n° d'ordre

THESE

présentée

A L'UNIVERSITE SCIENTIFIQUE ET MEDICALE DE GRENOBLE

pour obtenir le titre de docteur de specialité en

METALLURGIE

par

Michèle BADON - CLERC

—— • ——

Etude de la structure dendritique basaltique des alliages aluminium - cuivre

—— • ——

soutenue le 14 février 1973 devant la commission d'examen

M	P. BRISSONNEAU	président
MM	P. GUYOT	
	J. MORICEAU	examinateurs
	F. DURAND	

n° d'ordre

THESE

présentée

A L'UNIVERSITE SCIENTIFIQUE ET MEDICALE DE GRENOBLE

pour obtenir le titre de docteur de specialité en

METALLURGIE

par

Michèle BADON - CLERC

—— • ——

Etude de la structure dendritique basaltique des alliages aluminium - cuivre

—— • ——

soutenue le 14 février 1973 devant la commission d'examen

M	P. BRISSONNEAU	président
MM	P. GUYOT	
	J. MORICEAU	examinateurs
	F. DURAND	

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

UNIVERSITE SCIENTIFIQUE ET MEDICALE DE GRENOBLE

LISTE DES PROFESSEURS

Président : Monsieur Michel SOUTIF
Vice-Président : Monsieur Gabriel Cau

PROFESSEURS TITULAIRES

MM.	ANGLES D'AURIAC Paul	Mécanique des fluides
	ARNAUD Georges	Clinique des maladies infectieuses
	ARNAUD Paul	Chimie
	AUBERT Guy	Physique
	AYANT Yves	Physique approfondie
Mme	BARBIER Marie-Jeanne	Electrochimie
MM.	BARBIER Jean-Claude	Physique expérimentale
	BARBIER Reynold	Géologie appliquée
	BARJON Robert	Physique nucléaire
	BARNOUD Fernand	Biosynthèse de la cellulose
	BARRA Jean-René	Statistiques
	BARRIE Joseph	Clinique chirurgicale
	BENOIT Jean	Radioélectricité
	BERNARD Alain	Mathématiques pures
	BESSON Jean	Electrochimie
	BEZES Henri	Chirurgie générale
	BLAMBERT Maurice	Mathématiques pures
	BOLLIET Louis	Informatique (IUT B)
	BONNET Georges	Electrotechnique
	BONNET Jean-Louis	Clinique ophtalmologique
	BONNET-EYMARD Joseph	Pathologie médicale
	BONNIER Etienne	Electrochimie Electrométallurgie
	BOUCHERLE André	Chimie et Toxicologie
	BOUCHEZ Robert	Physique nucléaire
	BOUSSARD Jean-Claude	Mathématiques appliquées
	BRAVARD Yves	Géographie
	BRISSONNEAU Pierre	Physique du Solide
	BUYLE-BODIN Maurice	Electronique
	CABANAC Jean	Pathologie chirurgicale
	CABANEL Guy	Clinique rhumatologique et hydrologie
	CALAS François	Anatomie
	CARRAZ Gilbert	Biologie animale et pharmacodynamie
	CAU Gabriel	Médecine légale et Toxicologie
	CAUQUIS Georges	Chimie organique
	CHABAUTY Claude	Mathématiques pures
	CHARACHON Robert	Oto-Rhino-Laryngologie
	CHATEAU Robert	Thérapeutique
	CHENE Marcel	Chimie papetière
	COEUR André	Pharmacie chimique
	CONTAMIN Robert	Clinique gynécologique
	COUDERC Pierre	Anatomie pathologique
	CRAYA Antoine	Mécanique
Mme	DEBELMAS Anne-Marie	Matière médicale
MM.	DEBELMAS Jacques	Géologie générale
	DEGRANGE Charles	Zoologie
	DESRE Pierre	Métallurgie
	DESSAUX Georges	Physiologie animale
	DODU Jacques	Mécanique appliquée
	DOLIQUE Jean-Michel	Physique des plasmas
	DREYFUS Bernard	Thermodynamique
	DUCROS Pierre	Cristallographie
	DUGOIS Pierre	Clinique de dermatologie et syphilligraphie
	FAU René	Clinique neuro-psychiatrique
	FELICI Noël	Electrostatique
	GAGNAIRE Didier	Chimie Physique
	GALISSOT François	Mathématiques pures
MM.	GALVANI Octave	Mathématiques pures
	GASTINEL Noël	Analyse numérique
	GEINDRE Michel	Electroradiologie
	GERBER Robert	Mathématiques pures
	GIRAUD Pierre	Géologie
	KLEIN Joseph	Mathématiques pures
Mme	KOFLER Lucie	Botanique et physiologie végétale
MM.	KOSZUL Jean-Louis	Mathématiques pures
	KRAVTCHENKO Julien	Mécanique
	KUNTZMANN Jean	Mathématiques appliquées
	LACAZE Albert	Thermodynamique
	LACHARME Jean	Biologie végétale
	LAJZEROWICZ Joseph	Physique
	LATREILLE René	Chirurgie générale
	LATURAZE Jean	Biochimie pharmaceutique
	LAURENT Pierre	Mathématiques appliquées
	LEDRU Jean	Clinique médicale B
	LLIBOUTRY Louis	Géophysique
	LOUP Jean	Géographie
Mlle	LUTZ Elisabeth	Mathématiques pures
	MALGRANGE Bernard	Mathématiques pures
	MALINAS Yves	Clinique obstétricale
	MARTIN-NOEL Pierre	Seméiologie médicale
	MASSEPORT Jean	Géographie
	MAZARE Yves	Clinique médicale A
	MICHEL Robert	Minéralogie et Pétrographie
	MOURIQUAND Claude	Histologie
	MOUSSA André	Chimie nucléaire
	NEEL Louis	Physique du solide
	OZENDA Paul	Botanique
	PAUTHENET René	Electrotechnique
	PAYAN Jean-Jacques	Mathématiques pures
	PEBAY-PEYROULA Jean-Claude	Physique
	PERRET René	Servomécanismes
	PILLET Emile	Physique industrielle
	RASSAT André	Chimie systématique
	RENARD Michel	Thermodynamique
	REULOS René	Physique industrielle
	RINALDI Renaud	Physique
	ROGET Jean	Clinique de pédiatrie et de puériculture
	SANTON Lucien	Mécanique
	SEIGNEURIN Raymond	Microbiologie et hygiène
	SENGEL Philippe	Zoologie
	SILBERT Robert	Mécanique des fluides
	SOUTIF Michel	Physique générale
	TANCHE Maurice	Physiologie
	TRAYNARD Philippe	Chimie générale
	VAILLAND François	Zoologie
	VALENTIN Jacques	Physique nucléaire
	VAUQUOIS Bernard	Calcul électronique
Mme	VERAIN Alice	Pharmacie galénique
M.	VERAIN André	Physique
Mme	VEYRET Germaine	Géographie
MM.	VEYRET Paul	Géographie
	VIGNAIS Pierre	Biochimie médicale
	YOCCOZ Jean	Physique nucléaire théorique

PROFESSEURS ASSOCIES

MM.	BULLEMER Bernhard	Physique
	HANO JUN-ICHI	Mathématiques pures
M.	STEPHENS Michaël	Mathématiques appliquées

PROFESSEURS SANS CHAIRE

M.	BEAUDOING André	Pédiatrie
Mme	BERTRANDIAS Françoise	Mathématiques pures
MM.	BERTRANDIAS Jean-Paul	Mathématiques appliquées
	BIAREZ Jean-Pierre	Mécanique
	BONNETAIN Lucien	Chimie minérale
Mme	BONNIER Jane	Chimie générale
MM.	CARLIER Georges	Biologie végétale
	COHEN Joseph	Electrotechnique
	COUMES André	Radioélectricité
	DEPASSEL Roger	Mécanique des fluides
	DEPORTES Charles	Chimie minérale
	GAUTHIER Yves	Sciences biologiques

PROFESSEURS SANS CHAIRE (suite)

MM.	GAVEND Michel	Pharmacologie
	GERMAIN Jean-Pierre	Mécanique
	GIDON Paul	Géologie et Minéralogie
	GLENAT René	Chimie organique
	HACQUES Gérard	Calcul numérique
	JANIN Bernard	Géographie
Mme	KAHANE Josette	Physique
MM.	MULLER Jean-Michel	Thérapeutique
	PERRIAUX Jean-Jacques	Géologie et minéralogie
	POULOUJADOFF Michel	Electrotechnique
MM.	REBECQ Jacques	Biologie (CUS)
	REVOL Michel	Urologie
	REYMOND Jean-Charles	Chirurgie générale
	ROBERT André	Chimie papetière
	DE ROUGEMONT Jacques	Neurochirurgie
	SARRAZIN Roger	Anatomie et chirurgie
	SARROT-REYNAULD Jean	Géologie
	SIBILLE Robert	Construction mécanique
	SIROT Louis	Chirurgie générale
Mme	SOUTIF Jeanne	Physique générale

MAITRES DE CONFERENCES ET MAITRES DE CONFERENCES AGREGES

Mle	AGNIUS-DELORS Claudine	Physique pharmaceutique
	ALARY Josette	Chimie analytique
MM.	AMBLARD Pierre	Dermatologie
	AMBROISE-THOMAS Pierre	Parasitologie
	ARMAND Yves	Chimie
	BEGUIN Claude	Chimie organique
	BELORIZKI Elie	Physique
	BENSAKEN Claude	Mathématiques appliquées
	BILLET Jean	Géographie
	BLIMAN Samuel	Electronique (EIE)
	BLOCH Daniel	Electrotechnique
Mme	BOUCHE Liane	Mathématiques (CUS)
MM.	BOUCHET Yves	Anatomie
	BOUVARD Maurice	Mécanique des fluides
	BRODEAU François	Mathématiques (IUT B)
	BRUGEL Lucien	Energétique
	BUISSON Roger	Physique
	BUTEL Jean	Orthopédie
	CHAMBAZ Edmond	Biochimie médicale
	CHAMPETIER Jean	Anatomie et organogénèse
	CHIAVERINA Jean	Biolohie appliquée (EFP)
	CHIBON Pierre	Biologie animale
	COHEN-ADDAD Jean-Pierre	Spectrométrie physique
	COLOMB Maurice	Biochimie médicale
	CONTE René	Physique
	COULOMB Max	Radiologie
	CROUZET Guy	Radiologie
	DURAND Franis	Métallurgie
	DUSSAUD René	Mathématiques (CUS)
Mme	ETERRADOSSI Jacqueline	Physiologie
MM.	FAURE Jacques	Médecine légale
	GENSAC Pierre	Botanique
	GIDON Maurice	Géologie
	GRIFFITHS Michaël	Mathématiques appliquées
	GROULADE Joseph	Biochimie médicale
	HOLLARD Daniel	Hématologie
	HUGONOT Robert	Hygiène et médecine préventive
	IDELMAN Simon	Physiologie animale
	IVANES Marcel	Electricité
	JALBERT Pierre	Histologie
	Joly Jean-René	Mathématiques pures
	JOUBERT Jean-Claude	Physique du solide
	JULLIEN Pierre	Mathématiques pures
MM.	KAHANE André	Physique générale
	KUHN Gérard	Physique
	LACOUME Jean-Louis	Physique
Mme	LAJZEROWICZ Jeannine	Physique
MM.	LANCIA Roland	Physique atomique
	LE JUNTER Noël	Electronique
	LEROY Philippe	Mathématiques
	LOISEAUX Jean-Marie	Physique nucléaire
	LONGEQUEUE Jean-Pierre	Physique Nucléaire
	LUU DUC Cuong	Chimie organique
	MACHE Régis	Physiologie végétale
	MAGNIN Robert	Hygiène et médecine préventive
	MARECHAL Jean	Mécanique
	MARTIN-BOUYER Michel	Chimie (CUS)
	MAYNARD Roger	Physique du solide
	MICHOULIER Jean	Physique (I.U.T. "A")
	MICOUD Max	Maladies infectieuses
	MOREAU René	Hydraulique (INP)
	NEGRE Robert	Mécanique
	PARAMELLE Bernard	Pneumologie
	PECCOUD François	Analyse (IUT B)
	PEFFEN René	Métallurgie
	PELMONT Jean	Physiologie animale
	PERRET Jean	Neurologie
	PERRIN Louis	Pathologie expérimentale
	PFISTER Jean-Claude	Physique du solide
	PHELIP Xavier	Rhumatologie
Mle	PIERY Yvette	Biologie animale
MM.	RACHAIL Michel	Médecine interne
	RACINET Claude	Gynécologie et obstétrique
	RENAUD Maurice	Chimie
	RICHARD Lucien	Botanique
Mme	RINAUDO Marguerite	Chimie macromoléculaire
MM.	ROMIER Guy	Mathématiques (IUT B)
	SHOM Jean-Claude	Chimie Générale
	STIEGLITZ Paul	Anesthésiologie
	STOEBNER Pierre	Anatomie pathologique
	VAN CUTSEM Bernard	Mathématiques appliquées
	VEILLON Gérard	Mathématiques appliquées (INP)
	VIALON Pierre	Géologie
	VOOG Robert	Médecine interne
	VROUSSOS Constantin	Radiologie
	ZADWORNY François	Electronique

MAITRES DE CONFERENCES ASSOCIES

MM.	BOUDOURIS Georges	Radioélectricité
	CHEEKE John	Thermodynamique
	GOLDSCHMIDT Hubert	Mathématiques
MM.	SIDNEY STUARD	Mathématiques pures
	YACOUD Mahmoud	Médecine légale

CHARGES DE FONCTIONS DE MAITRES DE CONFERENCES

Mme	BERIEL Hélène	Physiologie
Mme	RENAUDET Jacqueline	Microbiologie

Cette étude a été réalisée à l'Ecole Nationale Supérieure d'Electrochimie et d'Electrométallurgie de Grenoble dans le Laboratoire de Thermodynamique et Physico-Chimie Métallurgiques associé au C.N.R.S.

Je suis heureuse d'exprimer ici toute ma reconnaissance à Monsieur le Professeur E. BONNIER pour l'accueil qu'il m'a toujours réservé dans son laboratoire.

A Monsieur le Professeur BRISSONNEAU qui me fait l'honneur de présider ce jury, j'adresse mes remerciements les plus vifs.

Mes remerciements vont également à Monsieur le Professeur GUYOT qui a bien voulu participer à ce jury.

Monsieur MORICEAU m'a donné de précieux conseils tout au cours de ce travail. Je lui en suis profondément reconnaissante.

Que Monsieur le Professeur F. DURAND trouve ici l'expression de ma gratitude pour l'aide qu'il m'a prodiguée au cours de la direction de cette étude.

A tous mes camarades j'exprime ma profonde sympathie pour leur aide amicale et la chaleureuse ambiance qu'ils ont su créer dans notre laboratoire.

INTRODUCTION

La plupart des alliages bruts de coulée ont une structure dendritique. Cette structure par les ramifications périodiques qu'elle présente évoque une forêt et cette image est à l'origine de son nom. Dans le cas des alliages la solidification progresse localement pendant l'intervalle de solidification et le développement du solide sous forme de ramification, s'accompagne d'un phénomène de ségrégation tridimensionnelle. La structure dendritique est donc une structure hétérogène qui découle des conditions de solidification. Cette hétérogénéité affecte les propriétés mécaniques des matériaux[1] et [2] et un traitement d'homogénéisation dont l'efficacité est fonction de la structure initiale[3][4] est souvent requis. Le contrôle des paramètres thermiques en cours de solidification constitue un moyen d'agir sur la structure et par là sur les conditions d'homogénéisation et les propriétés mécaniques.

Le présent travail a pour objet la détermination de l'influence des conditions locales de solidification sur la structure dendritique résultante. Les études ont été effectuées sur des alliages à base d'aluminium ; l'absence de transformation solide dans le système Al-Cu a fait retenir le cuivre comme élément d'alliage. Le pourcentage pondéral en cuivre varie entre 4 et 17 %. La solution solide d'aluminium se dépose sous forme de dendrite et l'eutectique Al-Al_2Cu occupe l'espace interdendritique.

La méthode expérimentale ainsi que le dispositif, permettant le contrôle de la solidification, sont décrits dans le Chapitre I.

Dans le chapitre II les conditions de solidification sont caractérisées par différents paramètres dont la mesure est précisée.

L'observation des échantillons ainsi obtenus conduit dans le chapitre III à caractériser la structure au niveau des plaques primaires et au niveau des branches secondaires.

De nombreuses études antérieures ont porté sur la structure dendritique des alliages aluminium cuivre. Elles sont analysées dans le chapitre IV en fonction des différentes grandeurs définies précédemment.

L'influence des conditions de solidification et celle de la concentration sur la structure résultante sont étudiées dans le chapitre V pour les branches secondaires et dans le chapitre VI pour les plaques primaires.

CHAPITRE I

METHODE EXPERIMENTALE

L'appareillage a été conçu pour réaliser dans des conditions thermiques réglables, des solidifications dirigées. Ce cas simplifié est plus particulièrement représentatif de la croissance basaltique des lingots.

A - LE DISPOSITIF EXPERIMENTAL -

Le dispositif expérimental (Fig. 1) est placé à l'intérieur d'un four Kanthal. La fusion et la solidification de l'alliage s'effectue dans cette même enceinte thermique.

Une lingotière constitue la partie centrale du dispositif. Elle est surmontée d'une poche de fusion et elle s'emboîte sur un bloc refroidisseur. Le dispositif est solidaire d'un fond mobile actionné par une crémaillère ; il peut être ainsi sorti rapidement de l'enceinte lors des opérations de trempe.

L'alliage est fondu dans la poche de fusion. Celle-ci est en alumine. Elle est obstruée en sa partie inférieure par une quenouille que l'on soulève au moment de la coulée.

Le flux thermique est rendu unidirectionnel par une circulation d'eau dans le bloc refroidisseur. Celui-ci est en cuivre, afin de faciliter les échanges thermiques entre l'eau et l'alliage.

Le bloc étant situé à l'intérieur du four, sa température peut atteindre 700°C avant l'introduction de l'eau, aussi il a été assemblé par brasure. Il comporte une arrivée centrale et deux sorties latérales plus grosses afin d'éviter de trop forte surpression en vapeur d'eau.

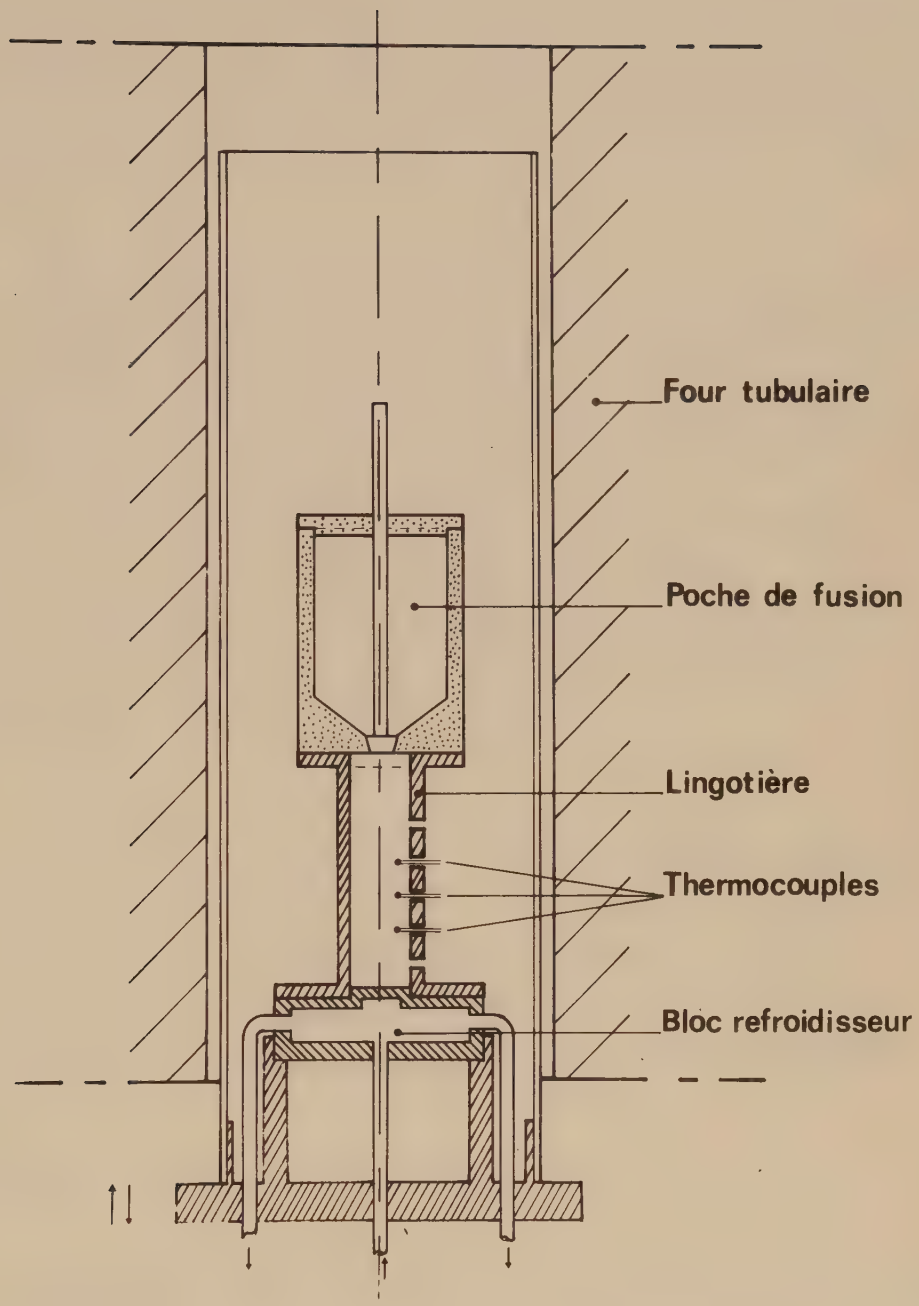


figure 1 : schéma du dispositif expérimental.

La solidification s'effectue dans la lingotière. Elle est constituée d'un tube d'acier inoxydable de 20 mm de diamètre intérieur et de 70 mm de hauteur ; elle est légèrement conique pour faciliter l'extraction du lingotin. La lingotière est percée suivant une de ses génératrices de trous équidistants de 8 mm permettant le passage des thermocouples. Ceux-ci sont reliés à un enregistreur.

Les manipulations sont conduites avec au moins trois thermocouples pénétrant latéralement dans la lingotière par des trous voisins. Le thermocouple central est situé à 14, 22 ou 30 mm du fond du lingot. Les soudures sont emprisonnées dans le métal à environ 6 mm du bord du lingotin. Les thermocouples sont du type chromel-alumel, ils sont constitués de fils de 16/100 de mm de diamètre, isolés par une gaine bifilaire, mais les soudures sont nues. L'extrémité des thermocouples est perdue à chaque opération, mais les fils de chromel et d'alumel qui conviennent parfaitement à la gamme de température étudiée ne sont pas très coûteux.

L'enregistreur doit répondre à divers impératifs : posséder au moins trois voies, être rapide, être sensible aux environs de 25 mV. Nous avons utilisé un enregistreur A.B.E.M. Type Ultralette en opposant une tension réglable à la différence de potentiel fourni par les thermocouples. La sensibilité résultante est de l'ordre de 3°C par millimètre de papier.

B - MANIPULATIONS -

Les alliages sont préalablement mis à la composition requise à partir d'aluminium et de cuivre 99,995. L'élaboration s'effectue dans un four annexe de coulée en source fonctionnant sous vide secondaire. 300 g d'alliage homogène sont ainsi préparés à chaque opération ; cette quantité constitue le matériau d'environ six lingotins.

Lors de la manipulation des morceaux d'alliage sont placés dans la poche de fusion pour être refondus. Lorsque l'ensemble du dispositif

atteint une température T_o supérieure à la température de fusion, la quenouille est soulevée pour faire couler l'alliage liquide dans la lingotière ; les oxydes formés lors de la refusion à l'air sont emprisonnés dans une peau qui ne passe pas dans la lingotière. L'alimentation électrique du four est ensuite coupée pour éviter la formation de courants induits et faciliter le refroidissement ; enfin la circulation d'eau est mise en route, elle refroidit alors un liquide pratiquement au repos. Les variations locales de température sont enregistrées sur le diagramme d'analyse thermique pendant tout le refroidissement. Dès que le lingotin est entièrement solidifié, le dispositif est sorti du four, le lingotin subit une trempe à l'air qui limite le processus de diffusion.

Les lingotins ainsi obtenus sont constitués entièrement de grains basaltiques longitudinaux ; la solidification s'est donc propagée de bas en haut sous un flux thermique unidirectionnelle. Le flux thermique transversal est négligeable : la lingotière est initialement à la même température que l'alliage, la conductivité de l'acier est inférieure à celle de l'alliage mais comme il ne subit pas de transformation, sa température est toujours voisine de celle de l'alliage, en lui étant légèrement supérieure car aucun grain ne part des parois. Ces lingotins sont ensuite sectionnés au niveau des thermocouples centraux et les structures observées sont reliées aux conditions thermiques obtenues après le dépouillement du diagramme d'analyse thermique.

CHAPITRE II

DIAGRAMME D'ANALYSE THERMIQUE

Au cours du refroidissement il s'établit dans le lingotin un champ thermique unidirectionnel $T_{(z,t)}$, z étant la cote mesurée à partir du bloc refrodisseur, t le temps. La solidification basaltique se développe par progression longitudinale d'une zone limitée par les isothermes liquidus et solidus. A l'intérieur de cette zone appelée "zone pâteuse" la fraction solide augmente au fur et à mesure que la température s'abaisse vers la température solidus. Le digramme d'analyse thermique [t,T] représente les variations de la température en fonction du temps pour des valeurs discrètes de z correspondant aux positions des thermocouples.

A - ALLURE DU DIAGRAMME -

La figure 2 (a et c) schématise les diagrammes d'analyse thermique. Le tracé de l'isotherme liquidus T_L et de l'isotherme solidus T_S prise égale à T_E matérialise l'intervalle de solidification (Fig. 2e). La valeur absolue de la pente $(\frac{dT}{dt})$ représente la vitesse de refroidissement. Les courbes ont même origine A car initialement la température est homogène, elles sécartent ensuite et présentent chacune des points particuliers :

- B_i situés sur l'isotherme liquidus
- C_i situés sur une isochrone
- éventuellement D_i situés également sur une isochrone.

En ces points, les courbes présentent des ruptures de pente caractérisant un changement de régime thermique. La portion de courbe AB relative au refroidissement du liquide, se décompose en deux parties : de A à M la pente de chaque courbe augmente en valeur absolue jusqu'à une certaine valeur qui est d'autant plus faible que la cote z est grande ; de M à C la courbe est linéaire. Ainsi après une période transitoire dont la durée croît avec z, il s'établit localement dans le liquide une vitesse de refroidis-

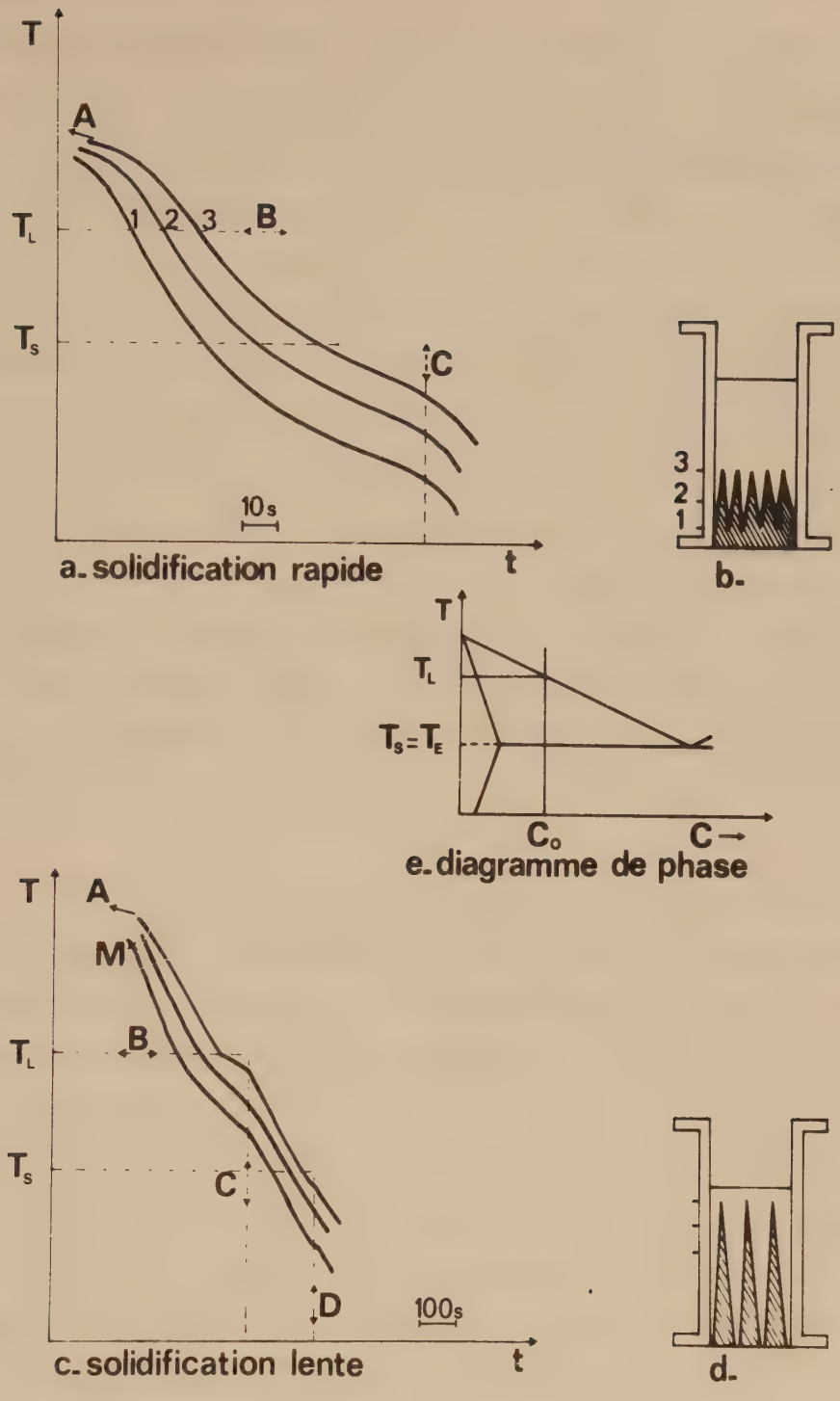


figure 2 : analyse thermique
les 2 types de diagramme (a,c) correspondent à des zones pâteuses d'étendue différente (b,d).

sement pratiquement constante jusqu'à la température liquidus. Le passage de l'isotherme T_L au niveau $z = z_i$ entraîne une variation locale de régime consécutive au début de solidification. Ceci se traduit généralement par une discontinuité de pente de part et d'autre de B. A partir de B la pente diminue en valeur absolue jusqu'au point C. En C la rupture de pente est simultanée à toutes les courbes, elle correspond à un changement de régime thermique dans l'ensemble du lingotin. D'après le modèle numérique de TIEN[5] les changements de régime thermique dans un milieu fini se produisent lorsqu'une extrémité de la zone pâteuse atteint une extrémité du milieu fini. A partir des températures indiquées par les thermocouples situés aux extrémités du lingotin nous déduisons que la rupture en C est produite par l'arrivée du front liquidus au sommet. Si le front solidus a déjà traversé la base du lingotin lorsque le front liquidus arrive au sommet, la solidification est rapide selon TIEN (Fig. a) et l'étendue de la zone pâteuse est inférieure à l'étendue du lingotin (Fig. b).

Lorsque le front liquidus atteint le sommet alors qu'il subsiste du liquide à la base, la solidification est lente (Fig. c) et la zone pâteuse est plus haute que le lingotin. Le refroidissement se poursuit après C de telle sorte que les courbes sont pratiquement des droites. Eventuellement elles présentent simultanément en D un léger palier qui est d'autant plus discernable que z est grand. Ce palier correspond au passage du front solidus au sommet du lingotin. De tous les changements de régime thermique le plus marqué est donc dû à l'arrivée du front liquidus au sommet du lingotin ; le refroidissement est ainsi facilité lorsque le solide s'étend sur toute la hauteur du lingotin bien qu'il puisse subister du liquide à la base.

La solidification se produit entre T_L et T_S. Le refroidissement dans cet intervalle s'effectue, selon la position du point C par rapport à l'isotherme solidus, suivant un ou deux régimes thermiques :

- deux régimes si $T_C > T_S$ c'est-à-dire quelque soit z lorsque la solidification est lente, et seulement près du sommet lorsque la solidification est rapide.

- un régime si $T_C < T_S$.

Dans le cas d'un seul régime de refroidissement celui-ci n'est cependant pas constant dans l'intervalle de solidification. Ainsi les conditions thermiques sont complexes, essentiellement dans l'intervalle de solidification.

B - LES PARAMETRES LOCAUX de la SOLIDIFICATION -

La solidification basaltique progresse d'une part axialement sous l'influence des variations de température le long de z, et d'autre part latéralement sous l'influence des variations de température locale. Les conditions thermiques de solidification sont donc caractérisées par les variations de $T_{(z,t)}$, définies par la différentielle :

$$dT = \left(\frac{\partial T}{\partial z}\right)_t dz + \left(\frac{\partial T}{\partial t}\right)_z dt.$$

$\left(\frac{\partial T}{\partial z}\right)_t = G$ est un gradient

$-\left(\frac{\partial T}{\partial t}\right)_z = P$ est une vitesse de refroidissement.

Pour une valeur de T fixée, dT est nul, V et G ne sont pas indépendants, et la relation permet d'évaluer la vitesse de déplacement de l'isotherme considérée.

$$V_T = \left(\frac{dz}{dt}\right)_T = - \frac{\left(\frac{\partial T}{\partial t}\right)_{z,T}}{\left(\frac{\partial T}{\partial z}\right)_{t,T}}$$

Le diagramme d'analyse thermique permet d'atteindre la valeur de la vitesse de refroidissement par la mesure de la pente d'une courbe à z et T fixés. La vitesse de déplacement de l'isotherme est obtenue en considérant le temps écoulé entre le passage de cette isotherme à z_{i-1} et à z_{i+1}. La valeur du gradient thermique est déduite de la relation

$$P = GV$$

Ces mesures ont été effectuées à la température liquidus. La vitesse de déplacement de l'isotherme liquidus ou vitesse du front liquidus est symbolisée par V_ℓ

$$\left(\frac{\partial z}{\partial t}\right)_{T_L} = V_\ell$$

La vitesse de refroidissement à T_L prenant des valeurs différentes de part et d'autre du point B, deux symboles sont utilisés : $P_{\ell\ell}$ est relatif au refroidissement en avant du front liquidus et $P_{\ell s}$ est relatif au refroidissement en arrière du front liquidus.

$$\left(\frac{\partial T}{\partial z}\right)_{t,T_L} = \begin{cases} \text{soit } P_{\ell\ell} \\ \text{soit } P_{\ell s} \end{cases}$$

Les valeurs du gradient respectivement $G_{\ell\ell}$ et $G_{\ell s}$ sont déduites de la relation $P = GV$.

Dans l'intervalle de solidification la relation précédente est toujours valable pour une température fixée, mais elle présente moins d'intérêt. En effet la vitesse de déplacement axiale d'une isotherme ne rend pas compte a priori de la vitesse de croissance latérale. D'autre part la vitesse de refroidissement évoluant tout au cours de cet intervalle, seules des grandeurs moyennes sont retenues :

t_m : le temps local de solidification

t_m est mesuré sur le diagramme par le temps qui s'écoule entre le passage de l'isotherme liquidus et de l'isotherme solidus.

P_m : la vitesse moyenne de refroidissement dans l'intervalle de solidification

Pm est déterminé par la relation :

$$T_L - T_S = P_m \cdot t_m .$$

A la température solidus seule la mesure de la vitesse de refroidissement P_s a été effectuée :

$$\left(\frac{\partial T}{\partial z}\right)_{t,T_s} = P_s$$

Pour définir les conditions thermiques locales de solidification nous mesurons donc la vitesse du front liquidus, les vitesses de refroidissement de part et

d'autre de ce front, le temps local de solidification, la vitesse de refroidissement au niveau du front solidus. De ces valeurs nous déduisons la valeur du gradient thermique au niveau du front liquidus et la vitesse moyenne de refroidissement dans l'intervalle de solidification.

C - VARIATIONS des CONDITIONS de SOLIDIFICATION :

Différentes variables externes ont été utilisées pour étudier l'influence des conditions de refroidissement sur la structure :

- le débit d'eau circulant dans le bloc refroidisseur
- la température de coulée T_o
- la hauteur du lingot h
- la cote des thermocouples.

Aucune relation analytique n'est établie entre ces variables et les paramètres thermiques locaux. Il est cependant constaté que si l'augmentation du débit d'eau provoque une accélération de la solidification, lorsque T_o augmente c'est essentiellement la vitesse V qui diminue, et lorsque h augmente c'est essentiellement le gradient G qui diminue. Les variables externes T_o et h permettent donc de faire varier V et G indépendemment dans une certaine mesure. Et l'habitude aidant,il est possible de prévoir la valeur des paramètres thermiques compte tenu des variables externes.

Les conditions thermiques au niveau des structures étudiées varient à l'intérieur des domaines suivants :

$0{,}5 \text{ cm/mn} < V_\ell < 25 \text{cm/mn}$

$10°C/cm < G_{\ell\ell} < 100°C/cm$

$20°C/mn < P_{\ell\ell} < 800°C/mn$

$5 \text{ s} < t_m < 400 \text{ s}.$

Lors de la coulée semi-continue des alliages légers, la vitesse de déplacement et la vitesse de refroidissement sont telles :

$5 \text{ cm/mn} < V_\ell < 22 \text{ cm/mn}$

$100°C/mn < P_{\ell\ell} < 700°C/mn$

Le domaine de notre étude couvre donc ces conditions, il s'étend même vers des vitesses plus faibles.

CHAPITRE III

MORPHOLOGIE

La structure dendritique est une structure périodique tridimensionnelle. Elle est mise en évidence et caractérisée sur des coupes métallographiques dont l'orientation est adaptée aux caractéristiques générales de la structure.

A - CARACTERISTIQUES GENERALES -

Les lingotins étudiés sont formés de grains basaltiques longitudinaux. Suivant la terminologie de FLEMINGS[6] chaque grain est composé d'une seule dendrite monocristalline, mais elle regroupe de nombreuses ramifications. Ces ramifications résultent d'une croissance préférentielle suivant les directions cristallographiques principales du cristal. Lorsque la phase dendritique à un réseau cubique face centré, comme c'est le cas des solutions solides d'aluminium, les ramifications sont en général normales entre elles et parallèles aux directions [100]. Les grains basaltiques sont issus de germes dont l'orientation initiale est favorable à leur développement, c'est-à-dire qu'une de leur direction [100] est proche de la direction du flux de chaleur. Nous considérons donc que la direction principale des grains basaltiques, c'est-à-dire l'axe du lingot, matérialise pratiquement la direction [001]. Dans un grain basaltique et pour des alliages seulement, les ramifications sont en forme de plaque et la structure est qualifiée de "cellular dendritic" par CHALMERS[7] et de "plate-like dendritic" par FLEMINGS.CHALMERS schématise cette structure par un cloisonnement constitué par deux familles de plaques parallèles et équidistantes se coupant à angle droit. L'intersection des plaques dites primaires s'effectue le long des axes primaires dont la direction est [001]. L'appellation primaire est liée à l'ordre d'apparition en cours de croissance. Ces plaques constituent donc la première forme de solide. Elles se développent dans l'intervalle de solidification en rejetant du soluté dans le liquide qui les entoure. La structure résultante est donc

constituée d'espaces cellulaires dendritiques riches en soluté, cloisonnés par des plaques moins alliées.

B - LES COUPES METALLOGRAPHIQUES -

La structure est observée sur des sections longitudinales du lingotin, c'est-à-dire parallèles à la direction [001] et sur des sections transversales donc perpendiculaires à cette direction, et effectuée au niveau des thermocouples. Les échantillons sont ensuite polis sur papiers 180 à 800, puis à l'alumine moyenne et douce. Le polissage est délicat, les alliages pauvres en cuivre ont des surfaces qui ont tendance à s'écrouir et à perdre leur pouvoir réflecteur ; sur les alliages plus riches, après les polissages grossiers, l'aluminium qui est moins dur que l'eutectique est légèrement en retrait et les rayures de polissage sont difficiles à éliminer sur cette phase. La structure est seulement révélée après attaque, le réactif $FeCl_3$ qui colore Al_2Cu est utilisé lorsque la proportion d'eutectique est suffisante, une attaque électrochimique convient mieux à l'alliage à 4 % en cuivre. Les échantillons sont ensuite microphotographiés et sur les tirages les zones pauvres en cuivre apparaissent en clair sur un fond noir qui correspond aux zones plus riches.

C - OBSERVATIONS -

En coupe transversale le cloisonnement apparaît sous la forme d'un quadrillage régulier de la surface par des rubans de solution solide qui constituent les sections des plaques primaires (Fig. 3). Ces plaques portent entre chaque axe primaire et perpendiculairement à elle-même des ramifications qui divisent les espaces cellulaires dendritiques isolés par le quadrillage primaire (Fig. 4). Ces ramifications d'épaisseur constante et régulièrement espacées sont appelées branches secondaires.

En général, la structure réelle est plus complexe et n'est qu'imparfaitement régulière. Pour la définir, sur le schéma d'une coupe transversale (Fig. 5) un carré identique à celui produit par le quadrillage mais cen-

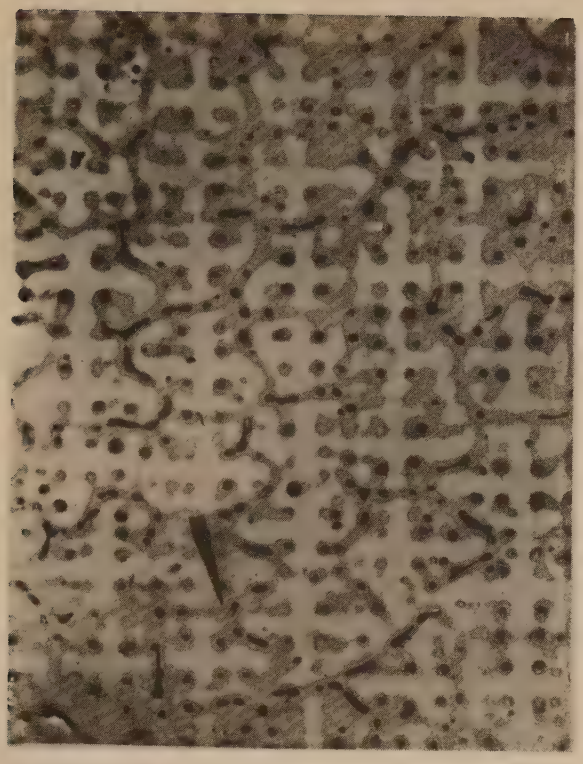


figure 3 : cloisonnement primaire en coupe transversale
C = 4 % P_{ll} = 100°C/mn

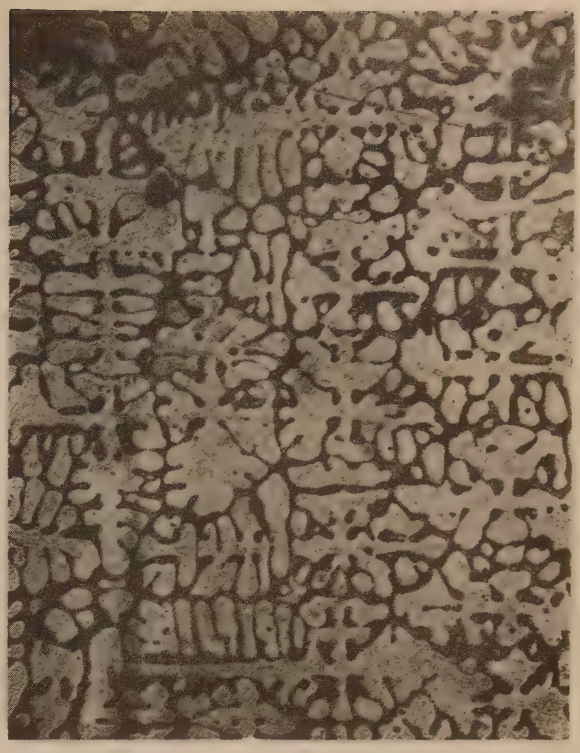


figure 4 : plaques primaires et branches secondaires en coupe transversale
C = 13 % P_{ll} = 100°C/mn

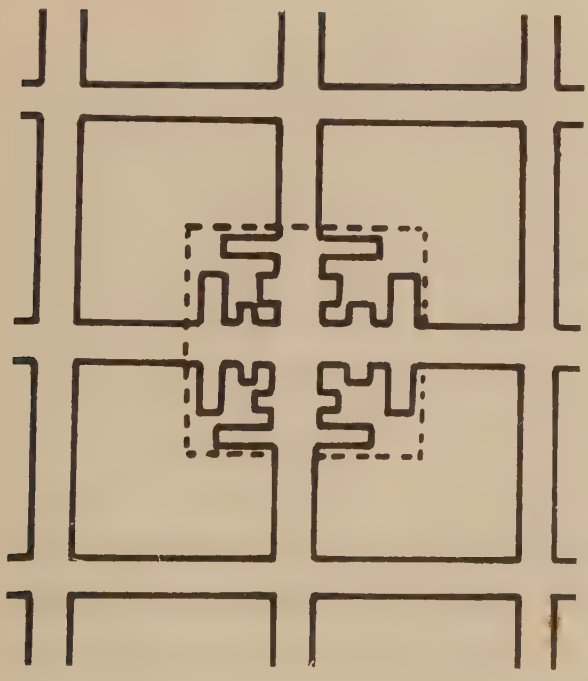


figure 5 : schéma d'une coupe transversale isolant un motif.

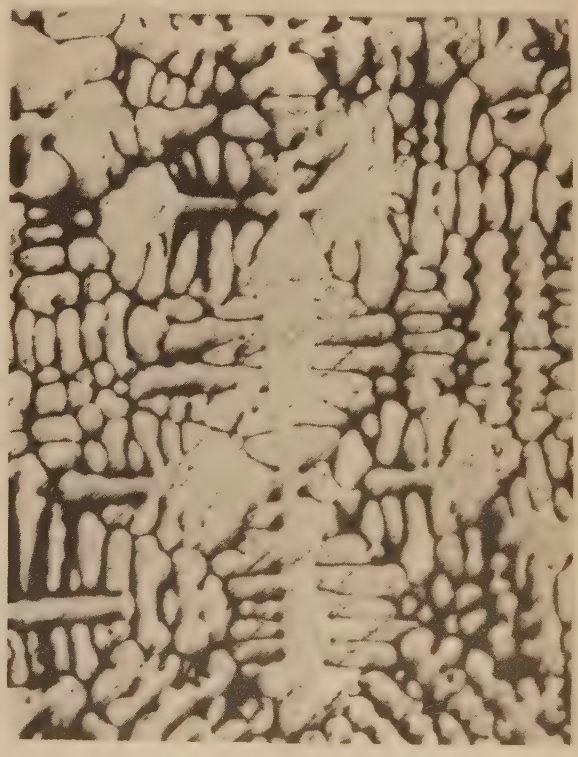


figure 6 : deux motifs sur l'alliage à 10 % en cuivre

tré sur un axe primaire est isolé. Nous appelons motif son contenu ; il est constitué d'une croix formée par l'intersection de deux plaques primaires et des branches secondaires associées. Deux motifs sont mis en évidence sur la figure 6. Leurs branches secondaires sont régulièrement espacées mais leur longueur varie en fonction de leur environnement, et elles ne s'attachent pas nécessairement aux plaques primaires au niveau de la coupe.

Toujours en section transversale, la structure réelle peut être définie par un réseau de motifs présentant des défauts. La figure 7 représente une coupe transversale effectuée à travers deux grains A et B. Chaque grain est constitué d'un grand nombre de motifs à branches parallèles. Alors que dans le grain A les sites des motifs sont par analogie avec la cristallographie, pratiquement du type (000), dans le grain B les motifs sont décalés. Au niveau de leur plaque primaire les motifs peuvent se raccorder ou être isolés par de l'eutectique. La proportion des motifs isolés croît avec la concentration, elle est pratiquement nulle à 4 % et vaut pratiquement 1 à 17 %, mais à cette concentration le filet d'eutectique qui isole les plaques primaires est encore très mince.

En section longitudinale la structure se présente sous différents aspects suivant l'orientation relative de la coupe et du grain. Sur une coupe quelconque, il apparaît des bandes de solution solide difficilement interprétables : elles sont plus ou moins larges, et plus ou moins échancrées, mais la périodicité du feston est identique sur toutes les bandes d'une même coupe et a même valeur que la périodicité d'attachement des branches secondaires en coupe transversale. Sur une coupe parallèle aux directions principales du grain (Fig. 8) les bandes de solution solide situées à l'aplomb des plaques primaires montre que celles-ci ont effectivement dans l'espace la forme de plaque. A l'aplomb des branches secondaires, il apparaît d'autres branches secondaires qui s'accrochent sur la section de la plaque. Leur espacement a la même valeur qu'en coupe transversale. Ainsi le feston des coupes quelconques correspond aux branches secondaires. La juxtaposition des coupes transversales et longitudinales montre que les branches secondaires

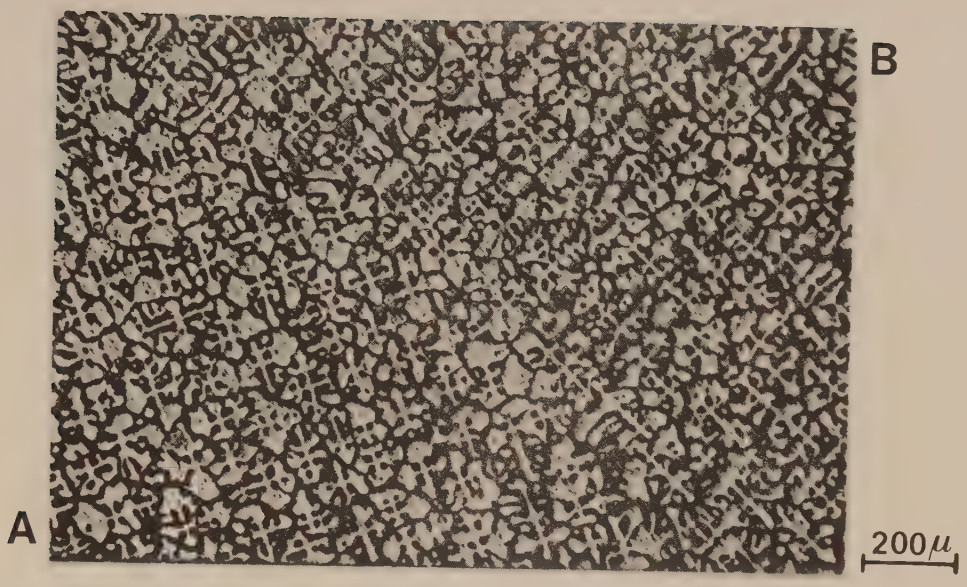


figure 7 : coupe transversale à travers deux grains.

figure 8 : coupe longitudinale passant par le plan médiateur de deux plaques primaires.

ont la forme de massue. Dans certains cas ces branches se rejoignent pour former des bandes ajourées où seuls des globules d'eutectiques matérialisent dans leur partie centrale l'attachement des branches secondaires à la plaque primaire. Ainsi des rangées de branches secondaires forment éventuellement des plaques à claires-voies. Dans des cas particuliers non retenus (concentration supérieure à 17 %, échantillon pris au sommet du lingot) la structure en plaque primaire n'est pas retrouvée, en coupe longitudinale des branches s'accrochent le long de l'axe primaire, il s'agit de structure du type "rod-like".

Le cloisonnement primaire plan formé par une solution solide peu alliée emprisonne donc, à l'intérieur d'espaces cellulaires dendritiques plus ou moins fermés suivant que les motifs sont raccordés ou isolés, une solution enrichie ce qui constitue une première hétérogénéité. Ces espaces sont eux-mêmes pénétrés par des branches secondaires, ce qui constitue une deuxième hétérogénéité.

D - MICROSEGREGATION -

L'observation des coupes après attaque a révélé une hétérogénéité liée à la présence de deux phases : la solution solide et l'eutectique. Cette hétérogénéité subsiste dans une structure monophasée et d'une manière générale elle est liée à une répartition tridimensionnelle locale du soluté. La reconstitution de la structure dendritique à l'aide de surface d'isoconcentration partant de mesure à la microsonde est une opération intéressante à divers titre :

- elle permet d'avoir simultanément les valeurs des concentrations extrêmes et la distance entre les points ayant ces concentrations, toutes ces grandeurs apparaissent lors du calcul du temps d'homogénéisation.

- elle donne une possibilité d'atteindre le mécanisme de croissance en appliquant le modèle de distribution du soluté de SHEIL-GULLIVER (Chapitre IV). Lorsque la fraction solide est f_s à laquelle peut être associée une température et un temps sur le diagramme d'analyse thermique, la concentration C_S du solide qui se dépose est donnée par le modèle :

$$C_S = k C_o (1-f_s)^{k-1}$$

C_o : concentration moyenne de l'alliage.

k : coefficient de partage solide-liquide $k < 1$

La concentration en un point étant connu, il est ainsi possible de déterminer à quel instant et dans quelle condition la solidification s'est produite en ce point.

Lors d'un stage effectué sous la direction de Monsieur BLANC aux aciéries d'Ugine, nous avons procédé avec succès à une telle reconstitution sur des structures dendritiques dans l'acier inoxydable. Dans le cadre du présent travail le tracé des lignes d'isoconcentration a été abandonné pour diverses raisons :

- Les structures étant relativement fines, il est difficile d'obtenir des coupes suffisamment précises permettant de suivre l'évolution de la concentration le long des axes des branches secondaires.
- Les mesures effectuées dans la solution solide au voisinage de l'eutectique sont erronées : le volume sur lequel s'effectue le comptage (le rayon de pénétration est égal à 4 microns pour une tension de 20 kV) englobe une partie de l'eutectique, et la concentration obtenue n'est pas celle du point étudié en surface. Les branches secondaires ayant des tailles du même ordre de grandeur que le rayon de pénétration des électrons les zones éloignées de l'eutectique sur lesquelles les mesures sont valables, ont donc des étendues limitées.

La répartition du soluté a été cependant déterminée en coupe longitudinale sur quelques plaques primaires (par exemple plaque de la figure 8). Les lignes d'isocencentration sont des droites présentant une symétrie axiale. La concentration est minimale tout le long de l'axe primaire et sa valeur est pratiquement $k C_o$; $k C_o$ est la concentration du solide en équilibre avec le liquide de composition C_o. La concentration étant minimale tout le long de l'axe primaire, la solidification a effectivement débuté le long de ces axes. Dans l'acier inoxydable de croissance équiaxe, l'axe principal des

dendrites du type "rod-like" présente seulement des points à concentration minimale ; ils sont situés au niveau de raccordement des branches. Cette différence laisse supposer que les mécanismes de solidification basaltique et équiaxe sont différents.

L'écart ΔC constaté entre la concentration minimale C_m mesuré au cœur des motifs et la concentration kC_o est certainement due à un phénomène de diffusion à l'état solide.

$$\Delta C \geq 0{,}2 \text{ pd\%} \quad \text{alors que} \quad kC_o \geq 0{,}7 \text{ pd \%}$$

Un rapide calcul effectué en se référant au diagramme de CARSLAW et JAEGER[8] permet d'appuyer cette hypothèse. En effet à l'intérieur de la dendrite la composition atteint une valeur maximale égale à la limite de solubilité kC_E, à une distance a du cœur du motif.

$\frac{C_m - kC_o}{kC_E - kC_o}$ est donné en fonction de $\frac{Dt^2}{a}$

D : coefficient de diffusion, t : temps de diffusion.

En prenant pour D une valeur moyenne correspondant à une température comprise entre 600 et 500°C $D \# 4.10^{-9} cm^2/s$ et pour a. $a = 20 \mu$

t est tel que :

$$t = 60 \text{ s.}$$

Ainsi l'écart ΔC peut être obtenu pour une vitesse de refroidissement de l'ordre de 100°C/mn, ce qui correspond aux vitesses de refroidissement de nos expériences.

Toutes les lignes d'isoconcentration ne sont donc pas connues, cependant les lignes de concentration minimale suivent les axes primaires, et la concentration est maximale entre les branches secondaires.

E - CARACTERISATION DE LA STRUCTURE -

La structure décrite précédemment est cloisonnée d'abord par les plaques primaires puis par les branches secondaires. Il semble difficile de la caractériser par un seul paramètre. De plus si en première constatation la structure s'affine lorsque la solidification dans un sens général est plus rapide, et lorsque la concentration augmente, il ne s'agit pas d'une simple réduction ; ainsi lorsque le quadrillage primaire se resserre (Fig. 9 passage de a ou b à c ou d) les branches secondaires peuvent être plus ou moins nombreuses (c et d). Ces constatations laissent prévoir que les paramètres influençant le cloisonnement primaire et les divisions secondaires sont différents.

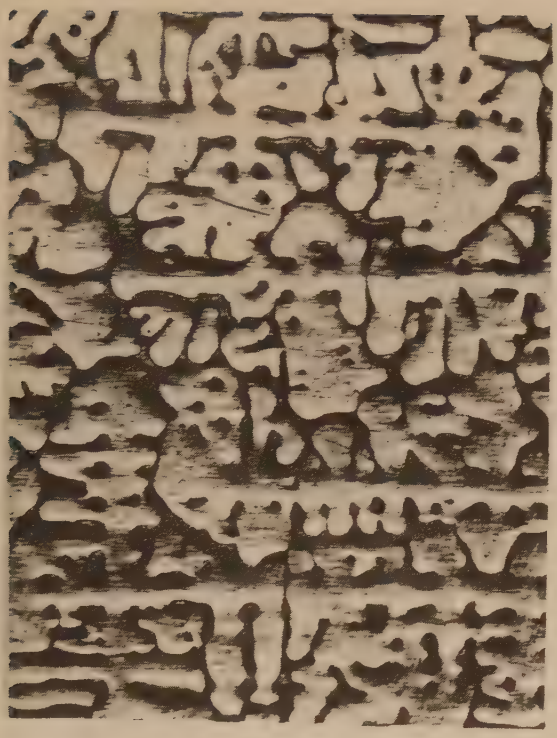
1°/ Le cloisonnement primaire :

Pour caractériser le cloisonnement primaire il a déjà été définie la distance entre axe primaire d par COLE[8] et IBARAKI[15] et la demi-largeur des plaques primaires Z par IBARAKI à propos de son modèle de croissance[27]. Pour rendre compte d'une structure qui n'est que statistiquement régulière, nous préférons compter le nombre de motifs par unité de surface N. Ce paramètre présente l'avantage d'être une valeur moyenne directe. La définition de N n'introduit pas réellement un nouveau paramètre. En effet, statistiquement les grandeurs sont liées par les relations :

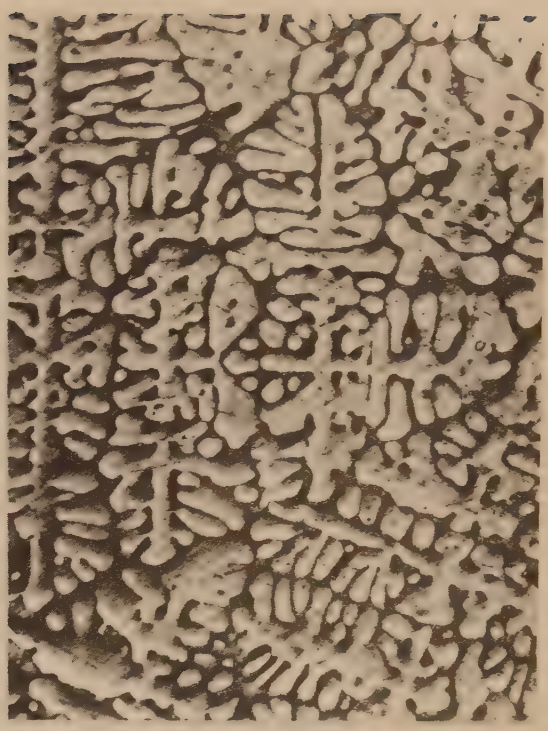
$$N\,d^2 \# 1$$

$$4\,N\,Z^2 \# 1$$

La deuxième relation est rigoureuse seulement lorsque les motifs sont raccordés. Cette relation n'est plus valable lorsque les motifs baignent dans l'eutectique, c'est-à-dire lorsque la proportion d'eutectique est grande. Dans le

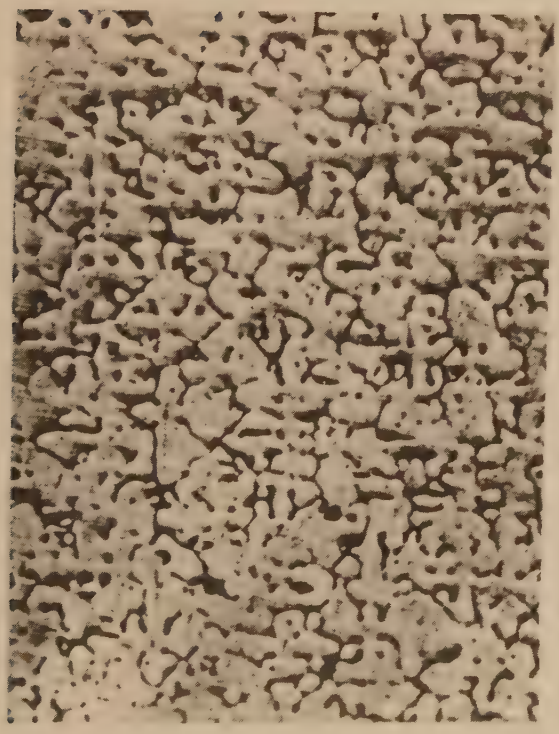


(a) C = 10 % P_{ll} = 40°C/mn

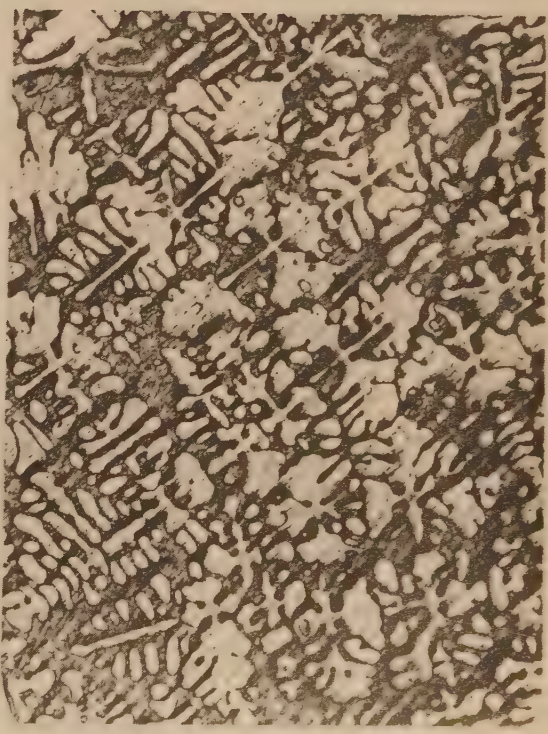


(b) C = 13 % P_{ll} = 35°C/mn

200µ



(c) C = 7 % P_{ll} = 75°C/mn



(d) C = 17 % P_{ll} = 75°C/mn

figure 9 : évolution de la structure en fonction de la vitesse de refroidissement et de la concentration.

cas de nos expériences, la proportion théorique d'eutectique atteint 40 % pour alliage à 17 % en cuivre. Mais dans les structures dendritiques cellulaires l'eutectique est localisé plus particulièrement à l'intérieur des espaces cellulaires ; à 17 % en cuivre, lorsque les motifs sont isolés, ils le sont seulement par un filet d'eutectique au niveau des plaques primaires ; c'est seulement au-delà de 17 % qu'il y a lieu de distinguer Z^2 et $1/N$. Dans le cas d'une structure cellulaire pure la distinction entre Z et d serait effectuée pour des concentrations plus faibles car l'eutectique est localisé à l'extérieur de la cellule $[Z^2 \neq \frac{\pi}{N} (1-f_E)]$.

Le cloisonnement primaire est donc caractérisé par le nombre N de motifs par unité de surface. N correspond à la densité superficielle en point de concentration minimale. Les variations de N sont identifiées aux variations de $1/d^2$ et de $1/Z^2$ pour des concentrations inférieures à 17 %. N est obtenu en général à partir du comptage d'environ 50 motifs. Pour l'ensemble de nos expériences N varie entre 5 et 300 motifs par millimètre carré, c'est-à-dire que le domaine de variation de d est compris entre 60 et 450 microns.

2°/ Les branches secondaires :

Les branches secondaires s'alignent suivant des rangées longitudinales et transversales. A un même niveau dans l'échantillon, elles ont statistiquement le même espacement sur les deux rangées. Cette grandeur de même que l'épaisseur des branches secondaires a déjà été utilisée dans des études antérieures (Chapitre IV) pour caractériser le cloisonnement secondaire. La mesure de l'épaisseur étant sujette à des incertitudes dues en partie aux attaches chimiques plus ou moins poussées, nous caractérisons le cloisonnement secondaire par l'espacement moyen des branches λ. Ce paramètre est mesuré indifféremment sur les coupes transversales ou longitudinales mais toujours parallèlement aux plaques primaires. Le domaine de variation de λ est compris entre 10 et 100 microns.

CHAPITRE IV

BIBLIOGRAPHIE

Depuis longtemps de nombreuses études ont portées sur la solidification dendritique. Elles se classent en deux catégories distinctes suivant leur centre d'intérêt : un intérêt théorique attaché à la connaissance du mécanisme de croissance d'une dendrite isolée, un intérêt pratique lié au contrôle des structures brutes.

En ce qui concerne l'intérêt théorique nous citerons les travaux d'IVANTSOV[9] repris simultanément par TEMKIN[10] d'une part et BOLLING et TILLER[11] d'autre part. Ces études sont relatives à la croissance libre de dendrite type "rod-like", isolée dans un corps pur. La croissance libre signifie que la chaleur latente est dégagée dans le liquide. La pointe de la dendrite acquiert un rayon ρ qui lui donne une vitesse de croissance maximale pour la surfusion donnée du liquide. L'apparition des branches secondaires se situe au voisinage de la pointe à environ $0,5\ \rho$, zone qui selon les calculs de KOTLER et TILLER[12] correspond à une zone de grande instabilité.

Dans l'aspect contrôle des structures, le problème est vu différemment : les dendrites ne sont plus isolées et elles croissent à partir d'un alliage. Lorsque leur croissance résulte de conditions extérieures imposées, la chaleur latente est dégagée dans le solide et les dendrites sont du type "plate like" ou dendrite cellulaire. Dans ce cadre, les études sont plus nombreuses mais aussi beaucoup plus expérimentales. Elles sont difficiles à comparer en raison d'une incohérence dans le choix des paramètres, et d'une imprécision sur leur définition.

A - BRANCHES SECONDAIRES -

Ce sont les branches secondaires qui ont donné lieu au plus grand nombre d'étude, car elles se définissent autant dans une structure équi-

axe que dans une structure basaltique. Ces études se classent sous trois rubriques :

- étude de l'influence des conditions de solidification sur l'espacement des branches secondaires
- étude de la microségrégation
- étude du grossissement des branches secondaires.

1°/Influence des conditions de solidification sur l'espacement des branches secondaires :

La littérature fournit un grand nombre de relations empiriques entre un paramètre traduisant la morphologie (espacement, épaisseur, taille) et un paramètre traduisant les conditions thermiques (vitesse de refroidissement à différents stades de la solidification P, temps de solidification t). Ces relations établies pour l'alliage Al-Cu à différentes compositions sont reportées dans le tableau (Fig. 10). Elles sont du type :

$$\lambda = A P^{-\alpha} \quad \text{ou} \quad \lambda = B t^{\alpha}$$

Elles traduisent toutes le même phénomène constaté dès 1950 par ALEXANDER et RHINES[20] : la structure s'affine lorsque la solidification devient plus rapide. Mais l'influence des conditions thermiques est plus ou moins grande selon les auteurs et les paramètres retenus ainsi :

$$0,23 < \alpha < 0,6.$$

L'étude de l'influence de la concentration donne lieu à des résultats totalement divergents. ALEXANDER et RHINES, ROHATGI et ADAMS déterminent que l'espacement croît linéairement avec la concentration alors qu'HOWARTH et NONDOLFO, IBARAKI déterminent des relations en sens inverse. MATYJA considère lire que l'espacement des branches n'est que très légèrement affecté par la nature et la concentration du soluté.

2°/Microségrégation :

BRODY et FLEMINGS[21] ont établi un modèle de répartition du soluté entre deux branches, dérivé du modèle classique de GULLIVER SCHEIL et PFANN. Dans ces deux modèles la teneur en soluté est constante

Auteurs	Structure	Paramètre de Structure	Paramètre de Solidification	Concentration	Lois empiriques
Howarth et Mondolfo (1962) (13)	basaltique	espacement	P	5-10-15-20-25-30-35-40	$\lambda = AP^{-0,25} - BC_o + D$ $\lambda = A'P^{-0,25} + BC_o + D$
Spear et Gardner (14) (1963)	équiaxe	taille moyenne	P_m	2-5-10	$\lambda = AP_m^{-0,337}$; $\lambda \nearrow C$
Bower-Brody-Flemings (1966) (6)	équiaxe et basaltique	espacement	t_m	4,5 %	$\lambda = 7,5\ t_m^{0,39}$
Ibaraki, Matsumoto (1968) (15)	basaltique	espacement	$P_{\ell s}$	5-10-14-19-27	$\lambda = AP_{\ell s}^{-0,25}$; $\lambda \nearrow C$
Rohatgi et Adams (16) (1967)	basaltique	espacement	t_m	1-4, 5-24	$\lambda\ t_m^{0,5} = A + BC_o$
Matyja-Giessen-Grant (1968) (17)	basaltique et équiaxe	espacement	P_m	1 → 11	$\lambda = t_m^{0,32}$
Drouzy et Richard (1969) (2)	basaltique	taille moyenne	P	AU_5GT	$\lambda = AP^{-0,23}$
Backerud et Chalmers (1969) (18)	basaltique radiale	espacement	P_s	1-4	$\lambda = AP_s^{-0,6}$; $\lambda \nearrow C$
Moriceau (19) (1972)	équiaxe	espacement	t_m $t_{fs=0,4}$	A_7U_4SG	$\lambda = A\ t_m^{0,32}$ $\lambda = A' t_{fs}^{0,44}$
Présent travail (1972)	basaltique	espacement	P_m	4-7-10-13-17	$\lambda = A\ P_m^{-0,34}\ C_o^{-0,5}$

Figure 10 : Tableau récapitulatif de l'influence des conditions thermiques et de la concentration sur l'espacement des branches pour l'alliage Al-Cu.

à l'intérieur d'un élément de volume. Dans le modèle de GULLIVER les variations locales de concentration sont dues uniquement à la transformation liquide-solide et à la diffusion totale dans le liquide. La diffusion solide est nulle

$$C_S^* = k C_o (1-f_s)^{k-1}$$

C_S^* : concentration du solide à l'interface lorsque la fraction solide est f_s.

Dans le modèle de FLEMINGS, la géométrie de l'élément de volume est définie par deux plaques fixes distinctes de λ et représentant les branches secondaires. La transformation liquide-solide conduit à l'épaississement de ces plaques à une vitesse supposée constante. Et si le liquide d'une tranche perpendiculaire aux branches est encore considéré comme homogène le solide ne l'est pas, il est soumis à la diffusion.

$$C_S^* = k C_o \left[1 - \frac{f_s}{1+K} \right]^{k-1}$$

$$K = \frac{4 D_S t_m}{\lambda^2} k$$

Le coefficient K qui rend compte de la diffusion dans le solide apparaît comme un facteur correctif au modèle de GULLIVER. Les auteurs appliquent ce modèle à la détermination de la fraction eutectique en considérant que le rapport $\frac{t_m}{\lambda^2}$ est constant (c'est-à-dire $\alpha = 0,5$ valeur déterminée expérimentalement par ROHATGI). En accord avec l'expérience la proportion d'eutectique est moindre que celle prévue par le modèle de GULLIVER et les auteurs concluent que la diffusion dans le solide est effective ; elle augmente la teneur en soluté dans les branches secondaires.

3°/Grossissement des branches secondaires :

Il a été observé que l'espacement des branches croît avec le temps au cours des maintiens isothermes, dans l'intervalle de solidification donc à fraction solide constante. Lors de ce maintien les petites branches de dendrites se dissolvent alors que les grosses branches se développent. Ce phénomène est appelé "coarsening" par KATTAMIS - HOLMBERG - FLEMINGS[22]. Par analogie avec le phénomène de grossissement des précipités nous tradui-

sons le mot "coarsening" par le mot coalescence. L'analyse numérique de la coalescence dendritique a été établie par CHERNOV[23] puis par REEVES et KATTAMIS[24] ; en considérant pour force motrice du phénomène la minimisation de l'énergie libre de l'interface solide-liquide, ils vérifient que le rapport surface volume des branches est une fonction décroissante du temps de maintien.

Ce phénomène est apparu intéressant pour rendre compte de l'espacement des branches secondaires après solidification. Les expériences de KATTAMIS, COUGHLIN et FLEMINGS[25] montrent que pour un même temps de grossissement : tg l'espacement final des branches secondaires est identique dans trois cas :

- solidification totale tg = t_m (f_s = 1)
- coalescence isotherme à f_s = 0,5 tg = t_m (f_s=0,5) + $t_{maintien}$
- solidification interrompue par trempe. tg = t_m trempe.

Les études ont couvert un domaine où le temps de grossissement varie entre 10^3 et 10^5 secondes ou 0,4°C/h <P_m <40°C/h alors que le domaine de variation de P_m pour nos propres expériences est compris entre 10 et 500°C/mn. Les auteurs concluent que l'espacement final lors de la solidification résulte d'un phénomène de coalescence analogue à celui qui se produit lors des maintiens isothermes et que l'épaississement dû à la solidification n'intervient pas.

Mais le modèle numérique établi en 1972 par WHISLER et KATTAMIS[26] détruit en partie ce point de vue. Pour traduire le grossissement des branches dans l'intervalle de solidification, les auteurs tiennent compte de la dissolution comme dans le cas des maintiens isothermes, mais aussi de l'épaississement dû au transfert liquide-solide suivant l'équation de SCHEIL. Les auteurs concluent :

- le grossissement par dissolution est d'autant plus grand que la vitesse de refroidissement est faible
- le grossissement par solidification est le phénomène prépondérant dès que la vitesse de refroidissement atteint 9°C/h. Nos essais sont situés dans un domaine où la vitesse de refroidissement est nettement supérieure à 9°C/h.

B - PLAQUES PRIMAIRES -

Le cloisonnement primaire a été moins étudié. IBARAKI[15] a déterminé expérimentalement que la distance entre axe primaire est inversement proportionnelle à la racine carrée de la vitesse de refroidissement en arrière du front liquidus, et proportionnelle à la racine carrée de la concentration. Ce résultat est en accord avec un modèle établi par IBARAKI[27] et compte des variations de la demi-largeur des plaques primaires z

$$Z = a_o \frac{[m(1-k)D_L]^{1/2}}{k} \left[\frac{C_o}{P\ell_s}\right]^{1/2}$$

m : pente ligne liquidus

k : coefficient de partage solide-liquide

D_L: coefficient de diffusion du liquide.

Mais SHARP et HELLAWELL[28] ont déterminé expérimentalement que la distance entre axe primaire est indépendant de la vitesse V_ℓ et de la concentration C_o lorsque la structure est dendritique et suit une loi en $V^{-1/2}$ lorsque la structure est cellulaire.

En conclusion, de l'ensemble de cette revue bibliographique, il ressort une tendance générale : la structure dendritique tant au niveau des plaques primaires qu'au niveau des branches secondaires est d'autant plus fine que la solidification est plus rapide. Nous constatons cependant : une disparité dans le choix des paramètres de structure et des paramètres thermiques retenus, et un total désaccord en ce qui concerne l'influence de la concentration.

CHAPITRE V

ESPACEMENT DES BRANCHES SECONDAIRES

Le cloisonnement secondaire est caractérisé par le paramètre λ. Ce paramètre est la mesure de l'espacement des branches secondaires effectuée parallèlement aux plaques primaires tant dans les rangées longitudinales que transversales. Dans l'ensemble de ces expériences λ varie entre 10 et 100 microns. Nous déterminons le paramètre thermique dont les variations sont le plus directement liées aux variations de λ, et dans ces conditions nous étudions l'influence de la concentration. Le paramètre thermique est choisi dans l'intervalle de solidification car les branches secondaires se développent dans cet intervalle. Elles croissent latéralement aussi l'influence d'une grandeur longitudinale, telle que la vitesse de déplacement d'un isotherme, n'est pas considérée.

A - INFLUENCE de la VITESSE MOYENNE de REFROIDISSEMENT P_m -

Le diagramme (Fig. 11) représente les variations de $\ell n\, \lambda$ en fonction de $\ell n\, P_m$ pour l'ensemble des alliages étudiés ; le domaine de variation de P_m est compris entre 10°C/mn et 700°C/mn. L'allure générale indique un sens de variation, analogue à celui qui est déterminé par les auteurs cités précédemment, c'est-à-dire décroissant avec P_m. Les points correspondant à chaque concentration sont regroupés, ainsi la concentration a une influence non négligeable. Les droites tracées sont telles qu'elles individualisent chaque concentration avec une dispersion acceptable pour chacune d'elle. Elles traduisent la loi de variation :

$$\ell n\, \lambda = - 0{,}34\, \ell n P_m + g\,(C_o)$$

d'où $\alpha = 0{,}34$.

$g(C_o)$ est une fonction décroissante de la concentration.

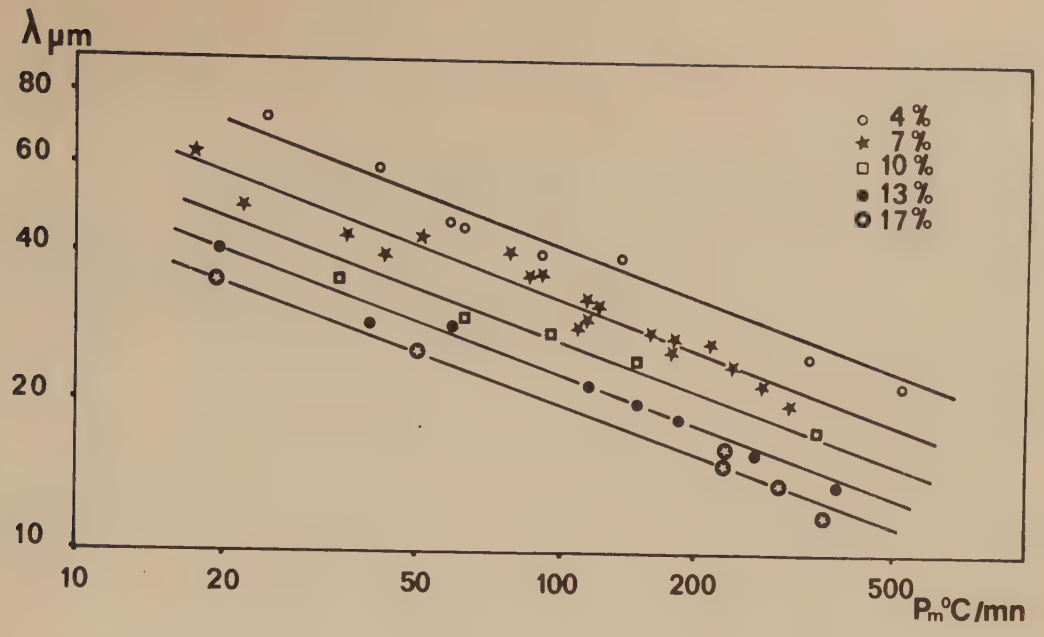


figure 11 : variation de l'espacement des branches secondaires en fonction de la vitesse moyenne de refroidissement.

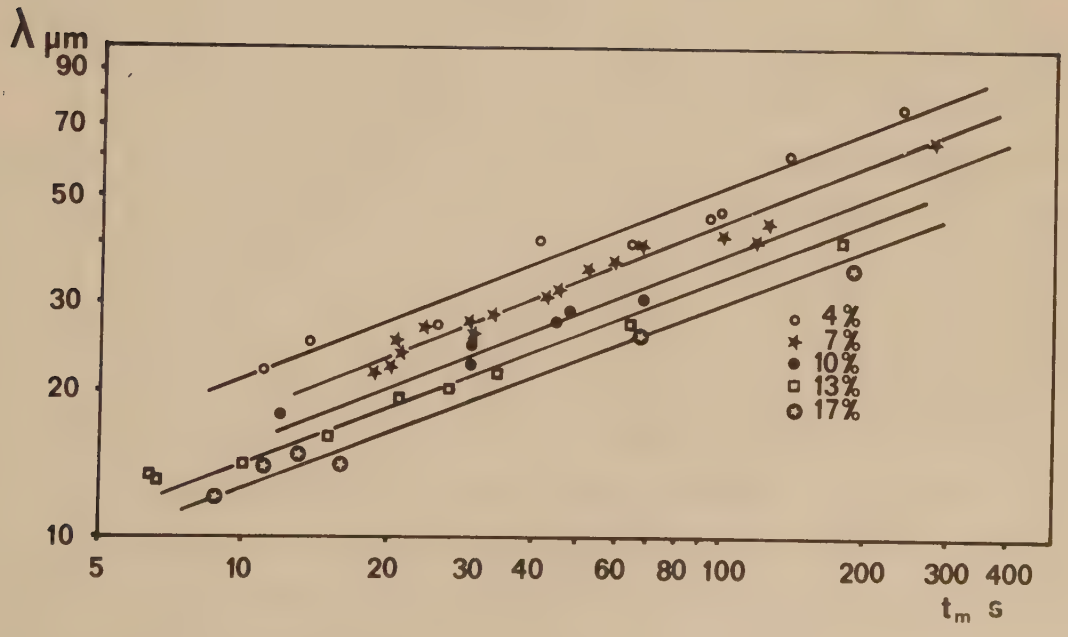


figure 12 : variation de l'espacement des branches secondaires en fonction du temps local de solidification.

Pour obtenir l'influence du temps local de solidification sur l'espacement des branches secondaires nous reportons dans la loi énoncée précédemment l'expression liant t_m et P_m

$$\ell n\, P_m = \ell n\, (T_L - T_S) - \ell n\, t_m$$

$$\ell n\, \lambda = 0{,}34\, \ell n\, t_m + g(C_o) - 0{,}34\, \ell n\, (T_L - T_S)$$

L'intervalle de solidification $(T_L - T_S)$ est lui même fonction de la concentration

$$(T_L - T_S) = (C_E - C_o)\, m \qquad C_o > C_S$$

Ainsi l'espacement des branches secondaires pour un temps de solidification donné est soumis à l'influence de la concentration par l'intermédiaire d'une fonction décroissante $g(C_o)$ et d'une fonction croissante $-0{,}34\, \ell n\, m\, (C_E - C_o)$. Si l'influence résultante est une fonction croissante, la concentration intervient dans des sens différents suivant que t_m ou P_m sont fixés, ce qui permettrait de justifier le désaccord signalé au chapitre IV; les auteurs ne retenant pas tous le même paramètre thermique. Le tracé du diagramme [$\ell n\, \lambda$, $\ell n\, t_m$] fournit l'influence résultante de la concentration (Fig. 12). Elle est très faible mais également décroissante.

Ainsi que ce soit à t_m ou à P_m fixé, l'espacement des branches secondaires est une fonction décroissante de la concentration. Nos résultats sont donc en accord avec ceux d'HOWARTH et MONDOLFO[13], mais la poursuite de la comparaison n'est pas possible, en effet : l'étude de l'influence de la concentration s'effectue après un lissage portant sur l'influence du paramètre thermique et les coefficients α ainsi déterminés sont différents pour ces auteurs et nous-mêmes. Pour caractériser l'influence de la concentration dans notre propre expérience, nous avons déterminé la fonction $g(C_o)$. Pour ce faire nous avons reporté sur le diagramme (Fig. 13) les valeurs de λ pour une valeur de P_m prise égale à 100°C/mn, pour chaque concentration. La dispersion est pratiquement nulle autour de la droite

$$\ell n\ \lambda = -0{,}5\, \ell n C + C^{te}.$$

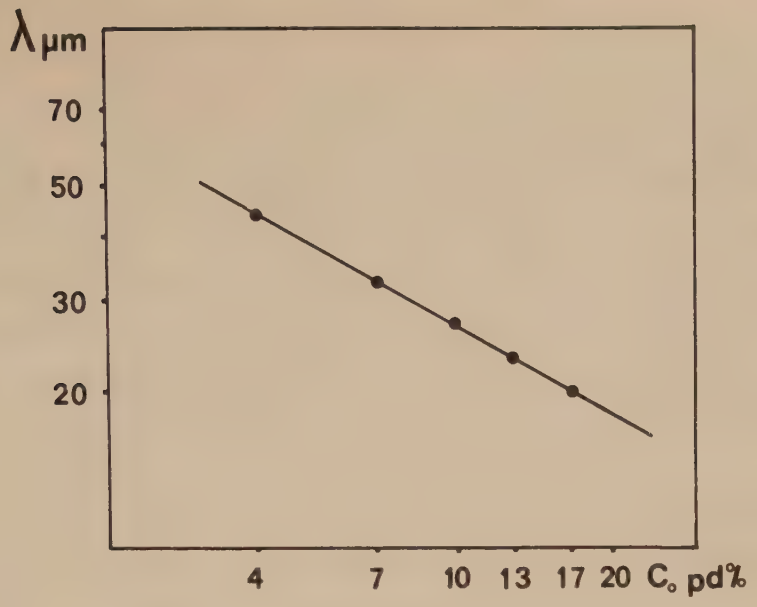


figure 13 : l'espacement des branches secondaires en fonction de la concentration en cuivre pour une vitesse de refroidissement Pm fixée (Pm = 100°C/mn).

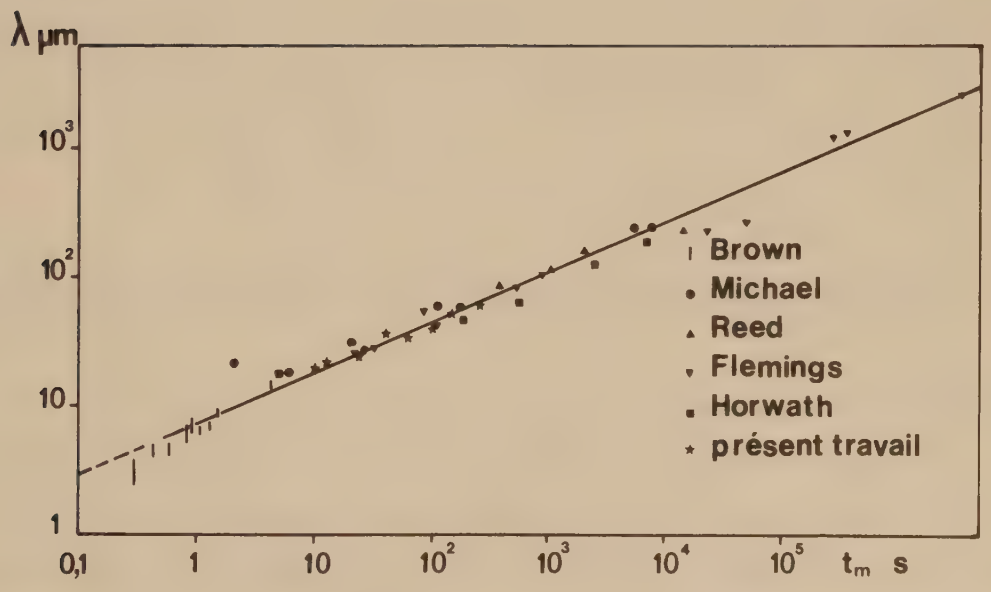


figure 14 : l'espacement des branches secondaires en fonction du temps de solidification pour l'alliage à 4 % de cuivre.

Afin de montrer que ce résultat n'est pas établi partant d'un coefficient α propre à nos expériences, nous avons reporté nos propres valeurs pour l'alliage à 4 % en cuivre sur le diagramme (Fig. 14) [$\ell n\, \lambda$, $\ell n\, t_m$] tracé par FLEMINGS[6] pour cette seule concentration. Son domaine de variation est très vaste car les données proviennent de différentes sources et sont relatives à des structures indifféremment équiaxes ou basaltiques. Ce diagramme permettait à FLEMINGS de conclure que le temps local de solidification est le paramètre thermique ayant un rôle important dans l'établissement de la valeur de l'espacement λ. La dispersion de nos points autour de la droite de FLEMINGS est très faible à l'échelle du diagramme.

$$\ell n\, \lambda = 0{,}39\ \ell n\, t_m + C^{te}.$$

La valeur 0,39 du coefficient α est légèrement différente de celle que nous avons établie précédemment, mais une pente valant 0,34 n'est pas aberrante sur le diagramme. Par ailleurs MATYJA[17], à partir de données pratiquement identiques à celle de FLEMINGS, obtient un coefficient différent également, et valant 0,32. Nous conservons donc la valeur 0,34 déterminée à partir de cinq concentrations. Ainsi les variations de l'espacement des branches secondaires, en fonction des conditions thermiques et de la concentration, peuvent être traduites par la loi :

$$\lambda \sqrt{C_o}\ P_m^{0,34} = C^{te}.$$

B - INFLUENCE des VITESSES de REFROIDISSEMENT INSTANTANEES -

L'étude du diagramme d'analyse thermique a montré que la vitesse moyenne de refroidissement est obtenue à partir de vitesses instantanées parfois fort différentes. Nous étudions maintenant si une de ces vitesses instantanées rend compte avec une qualité comparable à celle déterminée avec la vitesse moyenne des variations de l'espacement des branches secondaires.

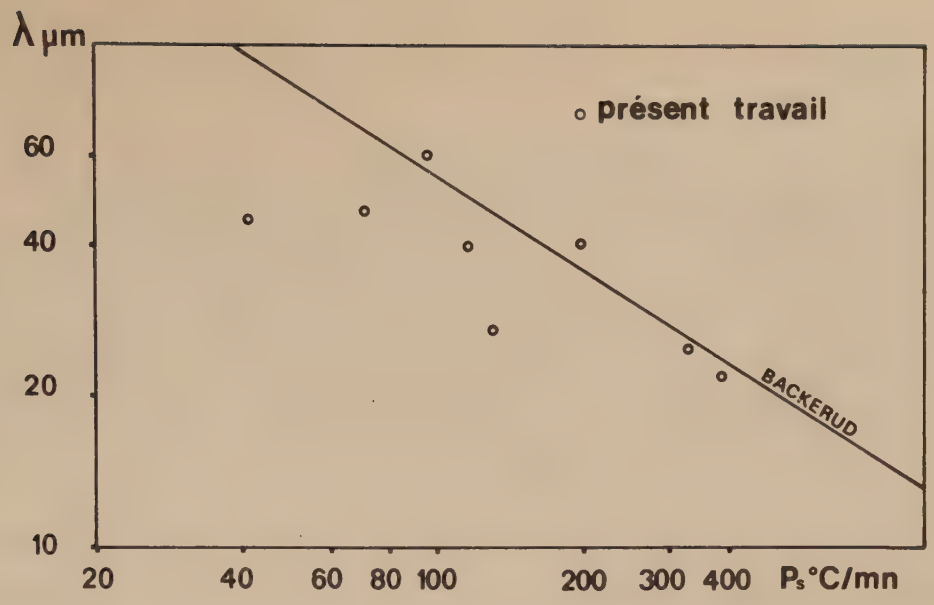


figure 15 : variation de l'espacement des branches en fonction de la vitesse de refroidissement en fin de solidification.

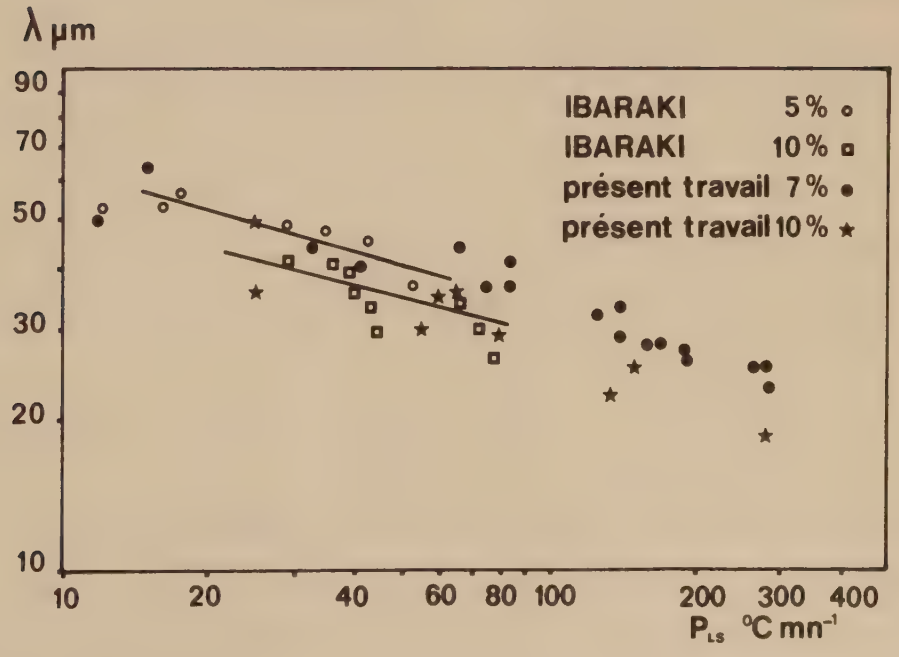


figure 16 : variation de l'espacement des branches en fonction de la vitesse de refroidissement en début de solidification.

1°/Vitesse de refroidissement en fin de solidification P_S :

Le diagramme (Fig. 15) représente les variations de $\ell n\, \lambda$ en fonction de $\ell n\, P_S$ pour l'alliage à 4 % en cuivre. La droite tracée $\ell n\, \lambda = -0,6\, \ell n\, P_S + C$ correspond aux résultats de BACKERUD[18] alors que nos propres mesures donnent les points totalement dispersés. Il n'apparaît pas de corrélation entre λ et P_S dans le cadre de nos expériences alors que la corrélation est excellente dans le cas des expériences de BACKERUD. La comparaison des deux méthodes expérimentales et des diagrammes d'analyse thermique associés permet de justifier cette différence. Alors que les diagrammes de BACKERUD sont tous analogues en particulier les points C sont toujours situés à une température supérieure à T_S ; nos diagrammes ont des allures fort différentes. Ainsi il est possible que P_S caractérise l'histoire thermique du lingot pour le type d'étude de BACKERUD.

2°/ Vitesse de refroidissement en début de solidification P_{LS} :

Le diagramme (Fig. 16) représente les variations de $\ell n\, \lambda$ en fonction de $\ell n\, P_{\ell s}$ pour les alliages à 7 % et 10 %. Nous avons reporté sur ce diagramme les résultats d'IBARAKI[15] pour les alliages à 5 et 10 %. Tous les points suivent une loi du type :

$$\ell n\, \lambda = -0,25\, \ell n\, P_{\ell s} + C.$$

La dispersion est du même ordre pour les points d'IBARAKI que pour les nôtres, mais la corrélation est cependant moins bonne qu'avec P_m.

C - DISCUSSION -

Des diagrammes précédents, il ressort que l'espacement des branches secondaires est fonction de la vitesse moyenne de refroidissement dans l'intervalle de solidification, mais aussi de la vitesse de refroidissement en début de solidification. Il s'agit là d'un résultat global portant sur l'état final de la structure. Alors que précédemment l'espacement des branches était considéré comme fixe (modèle de microségrégation de FLEMINGS) il apparaît actuellement que cet espacement varie dans l'intervalle de solidifi-

cation. Nos manipulations n'ont pas été orientées dans un sens permettant de mettre en évidence ce phénomène, l'évolution de l'espacement des branches secondaires lors des maintiens isothermes étant encore récemment significative pour des temps très nettement supérieurs au temps de solidification de nos expériences (Chapitre IV). Nous analyserons cependant nos résultats en terme de grossissement car MORICEAU[19] a montré dernièrement que l'espacement des branches secondaires croît dans l'intervalle de solidification pour des vitesses de refroidissement comparables aux nôtres. Dans nos expériences P_m qui varie entre 10°C/mn et 700°C/mn est trop grand pour que la dissolution des branches fines interviennent pour augmenter l'espacement selon le modèle de WHISLER et KATTAMIS[26]. Par contre le grossissement des branches sous l'apport de matière, issue de la solidification peut donner lieu à un épaississement des branches tel que deux branches voisines n'en forment plus qu'une, phénomène observé par KUANG HO CHIEN[29]. La maturation dans le modèle de KATTAMIS est traduite par les variations du rayon de courbure d'une branche :

$$\frac{dR}{dt} = \frac{1}{\pi(R^2+RL)} \frac{df_s}{dt} \frac{1}{\rho}$$

La branche est assimilée à un cylindre de longueur L de rayon R à calotte sphérique sa masse est M_T alors que sa densité est C $\frac{df_s}{dt}$ est déduit de l'équation de SCHEIL :

$$\frac{df_s}{dt} = \frac{1}{1-k} \frac{(T_M-T_L)^{\frac{1}{1-k}}}{(T_M-T)^{\frac{2-k}{1-k}}} \frac{dT}{dt}$$

T_M : température de fusion du corps pur

T_L : température de fusion de l'alliage.

L'espacement résultant d'une telle maturation est donc fonction d'une part de l'espacement initial ce qui justifie l'influence de $P_{\ell s}$ d'autre part d'un réarrangement faisant intervenir une sommation étendue à tout l'intervalle de solidification sur des termes du type $\frac{dT}{dt}$. Le résultat d'une telle sommation pourrait être précisé pour des diagrammes d'analyse thermique analogues. Pour nos expériences fort différentes, de même que pour celle de FLEMINGS, l'espacement est fonction de la valeur moyenne de $\frac{dT}{dt}$ soit P_m;

ce paramètre constitue donc en général une bonne approche de la sommation, dans des cas particuliers une autre grandeur thermique peut être mieux corrélée à l'espacement des branches secondaires. Mais la loi que nous proposons pour traduire l'influence de la concentration, est établie dans le cas le plus général, puisque nous l'avons déterminée après avoir retenu P_m pour paramètre thermique.

CHAPITRE VI

ESPACEMENT DES PLAQUES PRIMAIRES

Nous avons caractérisé le cloisonnement primaire par le nombre N de motifs par unité de surface. Ce paramètre, comme il a été indiqué à propos de la figure 9 (Chapitre III), varie avec les conditions de solidification et la concentration. Le cloisonnement plan de la structure résulte de la solidification dirigée. Par analogie avec d'autre type de structure orientée (cellule eutectique) pour lesquels les paramètres vitesse et gradient à l'interface sont les paramètres importants, nous étudierons leur influence respective. Mais nous commençons par appliquer le modèle d'IBARAKI.

A - MODELE d'IBARAKI -

D'après le modèle d'IBARAKI l'espacement des plaques primaires est une fonction croissante de la concentration et décroissante de la vitesse de refroidissement $P_{\ell s}$, ce qui correspond à nos résultats expérimentaux.

1°/Application globale :

La relation que propose IBARAKI est représentée sur un diagramme $[C_o/Z^2, P_{\ell s}]$ par une droite unique passant par l'origine. Pour appliquer cette relation à nos résultats expérimentaux (les variations de N étant assimilées aux variations de λ/Z^2) nous les représentons sous la forme du diagramme $[N\,C_o, P_{\ell s}]$(Fig. 17). En raison de la dispersion des points il est difficile de tracer une droite unique et cette dispersion se retrouve également sur le diagramme $[d, P_{\ell s}]$ tracé par IBARAKI (Fig. 18). La dispersion des points de concentrations différentes laisse supposer que la loi en C_o n'est qu'approchée. L'étude de la démonstration montre qu'effectivement elle résulte d'une hypothèse douteuse.

figure 17 : variation de N Co (N nb de motif, Co concentration) en fonction de la vitesse de refroidissement en début de solidification.

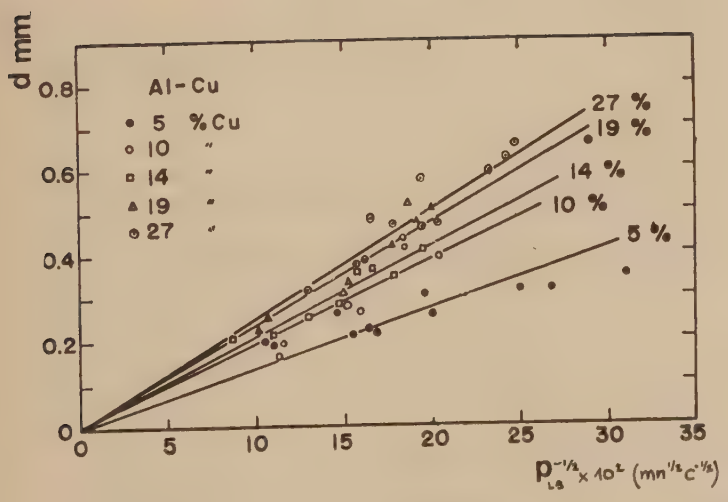


figure 18 : courbes expérimentales d'Ibaraki.

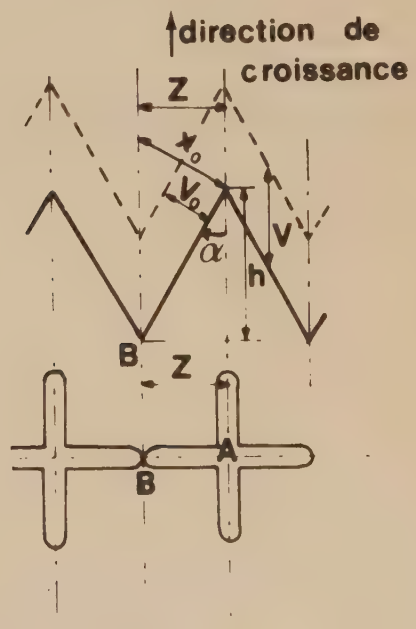


figure 19
coupe trans. et long. des plaques en cours de solidification

2°/ Démonstration :

Le modèle a pour but d'exprimer Z la demi-longueur des plaques primaires. Ces plaques en cours de croissance sont schématisées en coupe transversale et longitudinale sur la figure 19. Le point A est situé sur un axe primaire alors que le point B est à l'extrémité d'une plaque. La solidification des plaques peut être envisagée suivant : soit un mécanisme de croissance axiale dans la direction h, à la vitesse V, soit un mécanisme de croissance latérale dans la direction de x_o à la vitesse V_o en considérant le déplacement de l'arête AB parallèlement à elle-même. V_o est tel que :

$$V_o = V \sin \alpha \qquad (1)$$

Par des considérations géométriques Z s'exprime à l'aide de la relation :

$$Z^2 = \frac{h\, x_o\, V_o}{V} \qquad (2)$$

En assimilant les isothermes à des surfaces planes h est tel que :

$$h = \frac{T_A - T_B}{G}$$

T_A, T_B ; C_A, C_B les températures et les concentrations du solide en A et en B

G gradient thermique entre A et B.

En se referrant au diagramme de phase, la différence de température est :

$$T_A - T_B = \frac{m}{k} (C_B - C_A)$$

m : valeur absolue de la pente liquidus

k : coefficient de partage solide-liquide.

Ainsi h est telle que :

$$h = \frac{m}{kG} (C_B - C_A) \qquad (3)$$

L'expression de x_o n'est pas justifiée par IBARAKI. Pour l'atteindre nous considérons que la solidification progresse de A en B' (B' situé à x_o du point A dans la direction V_o) en suivant le déplacement à la vitesse V_o d'un interface plane. Celle-ci est parallèle à AB, elle a pour dimension ℓ l'épaisseur d'une plaque et $d\ell$ une longueur élémentaire dans la

direction AB. Alors que le liquide a une composition C_o la composition du solide en A sur l'axe primaire, C_A est égale à kC_o

$$[C_A = kC_o] \qquad (4)$$

la composition du solide en B' $C_{B'}$ est égale à C_B puisque les courbes d'iso-concentration sont des droites parallèles à l'axe primaire. La concentration $C_{B'}$ étant inférieure à C_o, au cours de cette croissance les conditions "steady state" dans lesquelles le solide qui se dépose à une concentration C_o ne sont pas atteintes. SMITH, TILLER et RUTTER[30] ont calculé dans ce cas de régime transitoire la composition du solide à la distance x_o du début de solidification. Une valeur approchée de C_{x_o} est fournie par l'expression :

$$C_{x_o} = C_o \{(1-k)[1-\exp(-\frac{kV_o}{D_L} x_o)+k]\}$$

D_L étant le coefficient de diffusion dans le liquide.

Ce résultat est établi en négligeant la diffusion dans le solide et pour une interface infinie ; pour l'appliquer à l'interface élémentaire nous négligeons en plus la diffusion parallèlement à $d\ell$ et à ℓ. Nous obtenons ainsi pour x_o l'expression :

$$x_o = -\frac{D_L}{kV_o} \ell n \frac{C_o - C_B}{C_o(1-k)} \qquad (5)$$

expression analogue à celle donnée par IBARAKI.

L'expression de Z^2 est obtenue en reportant les relations (3) et (5) dans (2) :

$$Z^2 = \frac{mD_L}{k^2} [(C_B - C_A) \ell n \frac{C_o(1-k)}{C_o - C_B}] \cdot \frac{1}{GV} \qquad (6)$$

IBARAKI obtient la loi en C_o en posant :

$$C_B = C_A + y (C_o - C_A)$$

et en prenant pour hypothèse que y est indépendant de la concentration et de la vitesse de refroidissement. En assimilant GV à $P_{\ell s}$ IBARAKI fait apparaître ainsi l'influence de la vitesse de refroidissement en arrière du front liquidus.

3°/Application à l'alliage à 4 % :

L'hypothèse selon laquelle y est indépendant de la concentration ne permet pas d'atteindre le cas où C_B est égale à la limite de solubilité kC_E. Nous conservons donc la relation (6). Mais le diagramme (Fig. 19) met également en évidence une dispersion des points correspondant au même alliage par conséquent le modèle ne fait pas intervenir le paramètre thermique sous sa forme adéquate. Cependant la dispersion étant moindre pour l'alliage à 4 % en cuivre et nous avons appliqué la relation (6) à cet alliage pour déterminer le coefficient de diffusion du liquide D_L

$$D_L = 4 \frac{P_{\ell s}}{N} \frac{k^2}{m} \left[(C_B - C_A) \ell n \frac{C_o(1-k)}{C_o - C_B} \right]^{-1}$$

$\frac{P_{\ell s}}{N}$ est déterminé expérimentalement. $\frac{P_{\ell s}}{N} \neq 3{,}7.10^{-4} cm^2/s$

$k = 0{,}17$

$m = 3{,}34$

Les mesures à la microsonde ont permis de déterminer $(C_B - C_A)$. Nous avons retenu les valeurs correspondantes à des valeurs de C_A proches de kC_o, c'est-à-dire lorsque la diffusion à l'état solide est limitée :

$$0{,}5 < C_B - C_A < 0{,}8 \quad \text{en pd \%}$$

$$6.10^{-5} cm^2/s < D_L < 14.10^{-5} cm^2/s.$$

Cette application n'est pas encore totalement satisfaisante. La valeur de D_L obtenue est grande comparée à la valeur retenue par JORDAN et HUNT[31]. $D_L = 3{,}26.10^{-5} cm^2/s$ avec voisinage de la température eutectique.

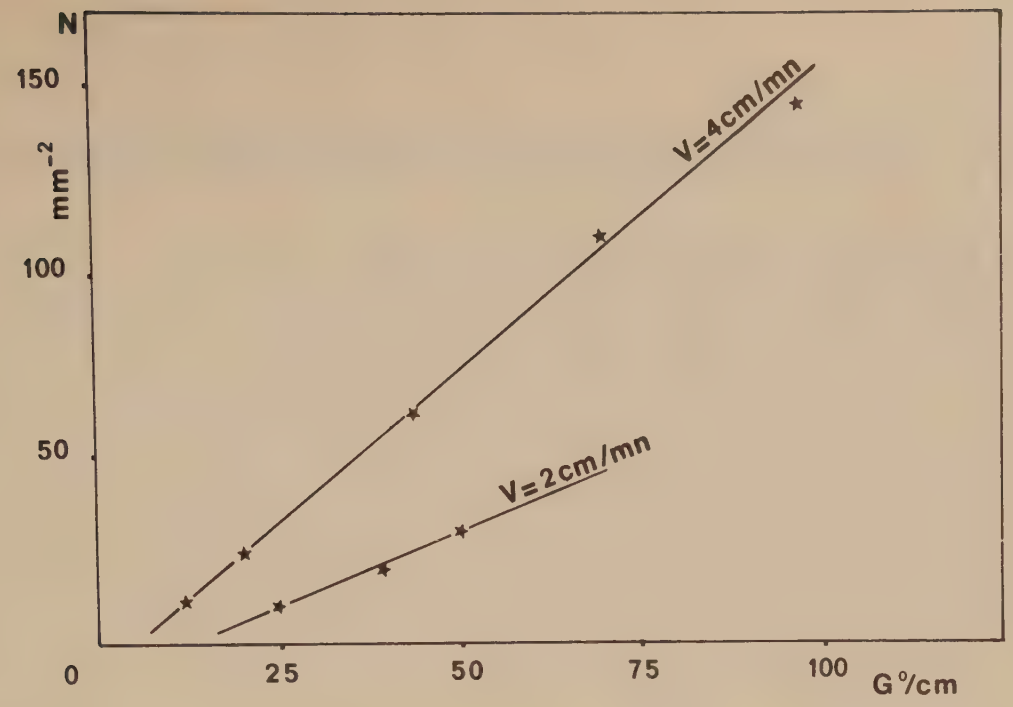


figure 20 : variation du nombre de motifs en fonction du gradient thermique en avant du front liquidus (Cc = 7 %)

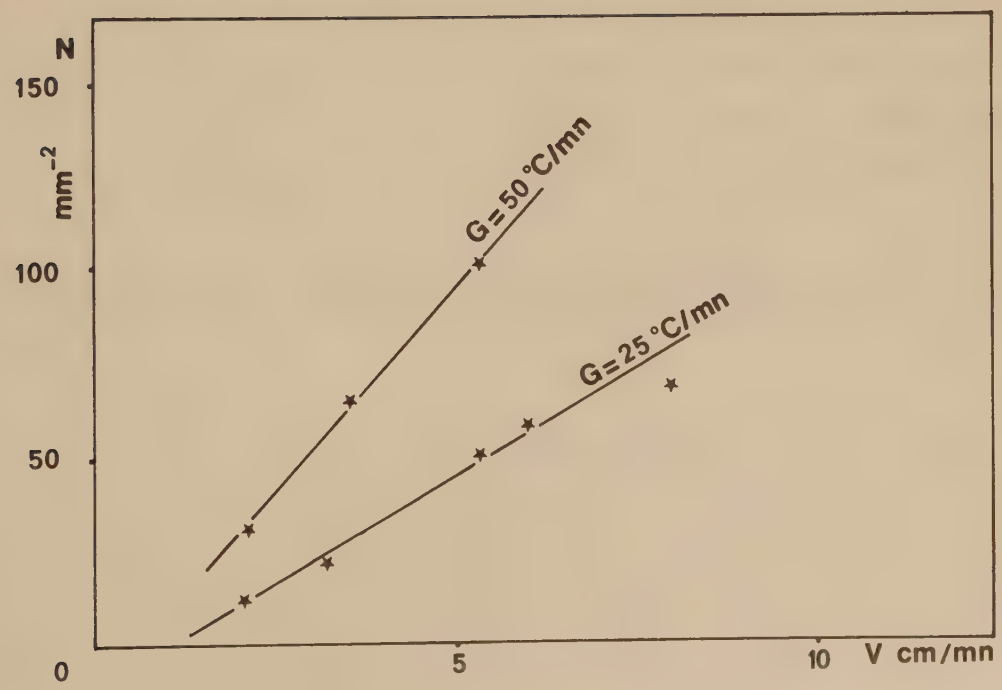


figure 21 : variation du nombre de motifs en fonction de la vitesse du front liquidus (Co = 7 %).

B - INFLUENCES RESPECTIVES de la VITESSE et du GRADIENT -

Lors de la croissance d'une structure dendritique il est difficile de définir une interface solide-liquide puisque les deux phases sont séparées par une zone pâteuse plus ou moins étendue, et donc de déterminer la vitesse de déplacement et le gradient à cette interface. Les axes primaires c'est-à-dire le cœur des motifs prenant naissance à la température liquidus, nous prendrons pour paramètre vitesse et gradient la valeur de ces grandeurs mesurées macroscopiquement sur l'isotherme liquidus. Notre dispositif expérimental permettant de faire varier V_ℓ et $G_{\ell\ell}$ indépendamment dans une certaine mesure nous avons étudié leur influence respective sur l'alliage à 7 % en cuivre. Le diagramme (Fig. 20) représente les variations de N en fonction de $G_{\ell\ell}$ dans un domaine où $G_{\ell\ell}$ varie entre 10 et 100°C/cm pour des vitesses de 2 et 4 cm/mn. N est une fonction linéaire croissante de G. Le diagramme (Fig. 21) indique que N est également une fonction linéaire croissante de V_ℓ. Sur chacun des diagrammes les droites ont même ordonnée à l'origine et leurs pentes sont proportionnelles respectivement à la vitesse et au gradient. Ainsi N est constant lorsque V_ℓ et $G_{\ell\ell}$ sont tels que leur produit est constant. Le produit V_ℓ par $G_{\ell\ell}$ n'est autre que $P_{\ell\ell}$ soit la vitesse de refroidissement en avant du front liquidus. Nous en concluons que lors d'une croissance dendritique dirigée, la vitesse de refroidissement en avant de l'isotherme liquidus est le paramètre important qui affecte l'espacement des plaques primaires.

C - INFLUENCE de la VITESSE de REFROIDISSEMENT en AVANT du FRONT LIQUIDUS -

Le diagramme (Fig. 22) représente les variations de N en fonction de $P_{\ell\ell}$ pour chaque concentration. Le nombre de motif est effectivement une fonction linéaire croissante de la vitesse de refroidissement à l'isotherme liquidus $P_{\ell\ell}$ et une fonction décroissante de la concentration. La dispersion est beaucoup plus faible que sur le diagramme (Fig. 17), ainsi N est plus directement lié à la vitesse de refroidissement mesurée macroscopiquement en avant du front liquidus qu'à la valeur mesurée en arrière de ce front.

Au voisinage de l'origine N est cependant pratiquement indépendant de $P_{\ell\ell}$ et de C. Les tracés correspondant à chaque concentration s'incurvent, ce qui laisse supposer que le régime de solidification est différent lorsque la vitesse de refroidissement diminue ou quand le nombre de motif tend vers zéro - la valeur N = 0 correspondant à une interface plane. Effectivement il est connu que lors d'une solidification dirigée d'une solution solide lorsque la vitesse de croissance augmente (pour une valeur constante du gradient) à une interface plane succède une interface cellulaire puis seulement une interface dendritique. Par ailleurs l'invariance de la distance d entre axe primaire (ou $N^{0,5}$) dans une structure dendritique après la transition cellule dendrite a déjà été signalée par SHARP et HELLAWELL[28]. L'étude de leurs données expérimentales ($VC_o < 500$ µm pd %/s ; $C_o = 2 - 20$ pd% ; G = 75 et 160°C/cm)permet de vérifier que leur conclusion est établie dans un domaine de vitesse de refroidissement ($P_{\ell\ell} < \sim 50$°C/cm) comparable au nôtre. Mais le présent travail permet de préciser qu'il s'agit d'un phénomène limité aux faibles vitesses de refroidissement. Et dans l'ensemble du domaine étudié nous considérons que l'espacement des plaques primaires est inversement proportionnel à la vitesse de refroidissement prise à la température liquidus $P_{\ell\ell}$.

D - INFLUENCE de la CONCENTRATION -

Pour caractériser l'influence de la concentration sur le cloisonnement primaire nous avons reporté sur le diagramme (Fig. 22) la valeur des pentes des droites de la figure, c'est-à-dire les valeurs lissées de $\frac{N}{P_{\ell\ell}}$ en fonction de la concentration. La courbe tracée indique que $\frac{N}{P_{\ell\ell}}$ est une fonction décroissante de C_o mais qui n'est pas du type $\frac{1}{C_o}$ comme le prévoit le modèle d'IBARAKI. La courbe en particulier n'est pas asymptotique à l'axe C_o, elle laisse supposer que le nombre de motif est nul pour une valeur finie de la concentration.

Effectivement les études de solidification dirigée sur des alliages plus concentrés et réalisées par PFLIEGER[32] ont montré que le nombre de motif est nul au voisinage de la composition eutectique ($C_o = 33$ %) à

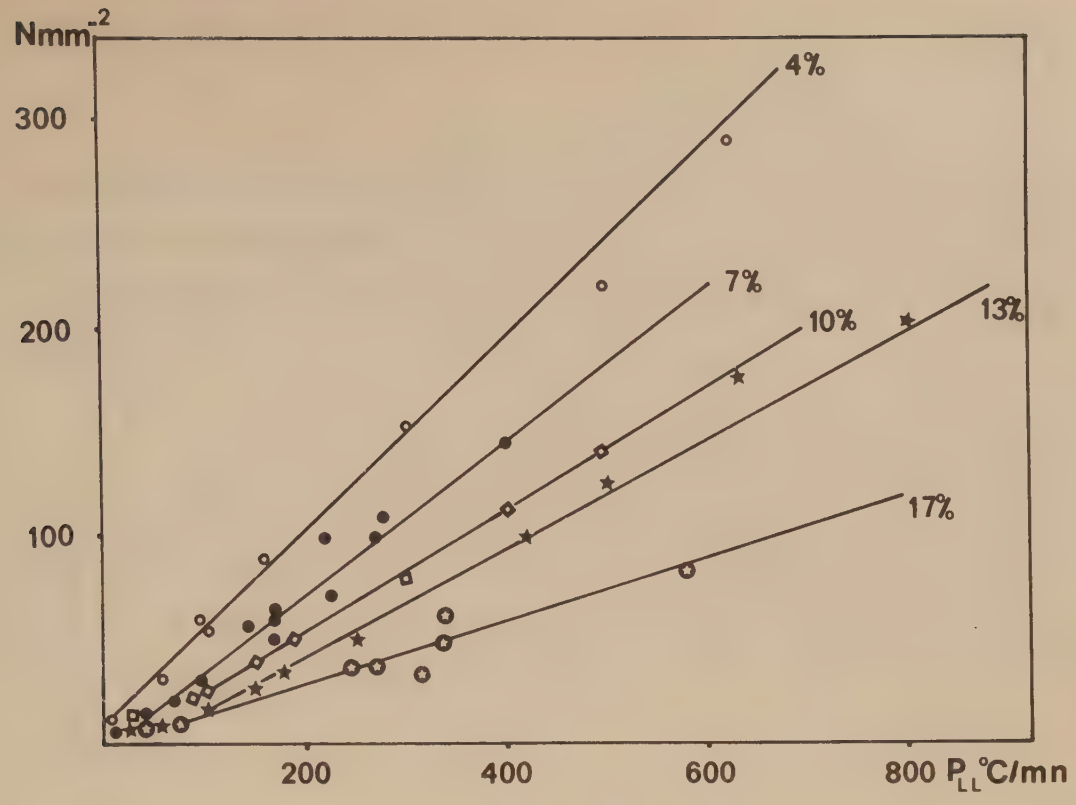


figure 22 : variation du nombre de motifs en fonction de la vitesse de refroidissement en avant du front liquidus pour différentes concentrations en cuivre.

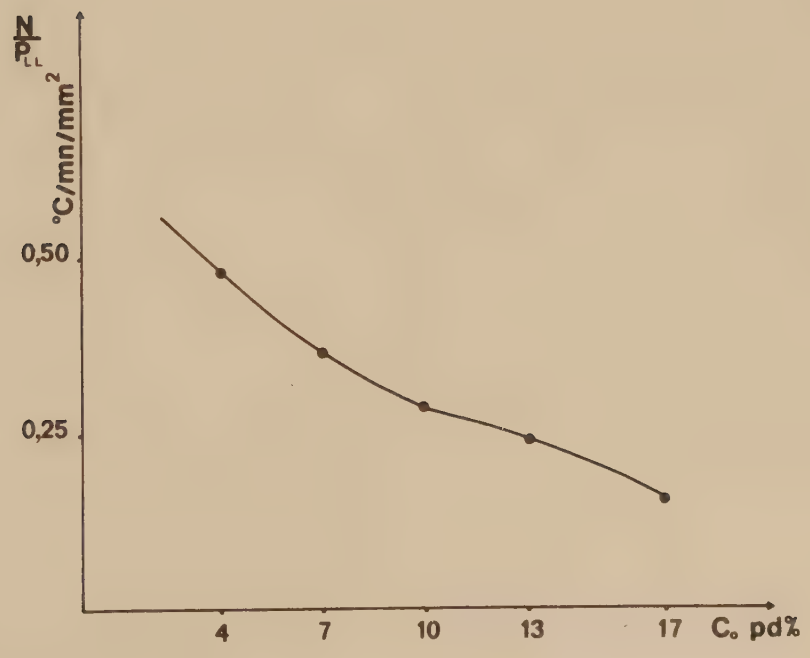


figure 23 : influence de la concentration sur le nombre de motifs.

l'intérieur d'une zone couplée. Ainsi le nombre de motif est une fonction décroissante de la concentration (où l'espacement des plaques primaires croît avec C_o) qui atteint la valeur zéro au niveau de la transition dendrite eutectique orientée.

Ainsi la structure dendritique orientée dont le domaine de formation est limité par la transition cellule dendrite et la transition dendrite eutectique est caractérisée par ses plaques primaires. Le nombre de motifs que forment ces plaques est une fonction linéaire croissante de la vitesse de refroidissement en avant du front liquidus, et une fonction décroissante de la concentration.

CONCLUSION

Notre travail a porté sur l'étude de la structure dendritique basaltique dans l'alliage aluminium cuivre pour des concentrations pondérales en cuivre variant entre 4 et 17 %. Cette structure se forme à l'intérieur d'une zone pâteuse dont le front liquidus se déplace à des vitesses variant entre 0,5 et 25 cm/mn dans des gradients thermiques compris entre 10°C/cm et 100°C/cm et dont le refroidissement moyen varie entre 20 et 500°C/mn dans le cas de nos expériences.

L'observation des structures conduit à distinguer les ramifications primaires en forme de plaque que nous caractérisons par le nombre de motif qu'elles forment par unité de surface, et les ramifications secondaires en forme de massue, leur espacement est retenu comme paramètre. Par des analyses à la microsonde, nous avons déterminé les lignes d'iso-concentration dans les plaques. Ce sont des droites symétriques par rapport aux axes primaires et la concentration est minimale tout le long de ces axes.

La synthèse des études antérieures montre que différents paramètres thermiques sont retenus pour rendre compte des variations de l'espacement des branches ~~primaires~~ secondaires. Nous avons effectué un choix à partir de nos propres valeurs expérimentales. La vitesse de refroidissement dans l'intervalle de solidification apparaît comme le concluait déjà FLEMINGS comme le paramètre important. Aussi l'influence de la concentration a été étudiée lorsque cette condition thermique est fixée. Nous déterminons ainsi la loi de variation :

$$\lambda \sqrt{C_o}\, P_m^{0,34} = C^{te}.$$

En considérant que la croissance latérale des plaques primaires s'effectue suivant un régime de solidification plane dans sa période transitoire nous rétablissons le modèle d'IBARAKI. Son application n'est cependant pas satisfaisante.

Sur l'alliage à 7 % en cuivre nous avons déterminé que le nombre de motifs par unité de surface est une fonction linéaire croissante de la vitesse du front liquidus et du gradient à ce niveau. Pour l'ensemble des concentrations étudiées, le nombre de motifs est une fonction linéaire croissante de la vitesse de refroidissement en avant du front liquidus et une fonction décroissante de la concentration.

TABLEAU DES VALEURS EXPERIMENTALES

Concentration	N°	V_ℓ cm/mn	$P_{\ell\ell}$ °C/cm	$P_{\ell s}$ °C/cm	P_m °C/cm	N/mn²	λμm
	1	3,2	295	280	240	156	27
	2	1,1	38	38	40	22	60
	3	2,3	95	70	95	59	40
	4	2,9	160	160	140	91	40
	5	20	625	625	545	290	22
C_o = 4 %	6	18,5	500	500	350	240	25
	7		8	8	25	6,25	75
	8	3	105	90	64	35	45
	9	3	60	60	60	30	46
	10	1	20	15	16,5	4	64
	11	2,7	100	65	37	31	44
	12	3,2	150	125	125	30	32
	13	2,1	84	84	82	17,5	41
	14	4	50	40	45	10	40
	15	4	80	60	120	23	30
	16	2	50	33	53	12	44
	17	3,2	220	190	180	100	26
C_o = 7 %	18	2	100	83	95	31	37
	19	4	400	285	240	145	25
	20	5,4	270	270	240	100	25
	21	4	170	170	225	59	27
	22	3,2	75	75	90	21	37
	23	3,4	170	140	115	64	29
	24	0,4	12	12	22,4	5,2	50
	25	6	140	160	163	59	28
	26	5,3	80	140	120	17,5	33
	27	5,3	170	190	180	51	27
	28	4	280	280	320	110	20
	29	8	225		280	69	22
	30	1,5	90	60	29	17	35
	31		300	150	154	69	25
	32	0,3	150	80	100	40	28
	33	10	95	55	65	23	30
C_o = 10 %	34	1,3	25	25	25	4,75	36
	35		500	280	390	135	18
	36	12	190	135	160	40	22
	37	1,1	40	25	12	6,25	50
	38	3	85	65	35	16	35
	39	3,85	105	85	62	16	29
	40	3,7	180	156	120	34,5	22
	41	4,1	300	260	185	51	19
	42	4,4	53	50	41	7,2	29
C_o = 13 %	43	0,5	35	35	20	5	40
	44	24	800	800	630	205	13
	45	9,5	500	500	400	124	14
	46	3,5	150	150	150	26	20
	47	10,5	630	530	630	178	13,5
	48	7	420	420	270	100	16

.../...

Concentration	N°	V_2 cm/mn	P_{2l} °C/cm	P_{2s} °C/cm	P_m °C/cm	N/mn^2	λ µm
C_o = 17 %	49	0,85	270	255	240	38	16
	50	1,2	32	22	20	5,2	36
	51	1,5	75	60	52	10	26
	52	6	340	340	315	64	16
	53	2,7	315		236	34	16
	54	3,35	580	500	374	83	12
	55	10,5	340	340	300	47,5	14
	56		245	245		39	15

REFERENCES

(1) - R. PATTYN - 34e Congrès international de fonderie - Octobre 1967. C. n° 26

(2) - M. DROUZY et M. RICHARD - Fonderie 235 - Décembre 1969 - 500-504

(3) - G. BLANC et R. TRICOT - Mémoires Scientifiques Rev. Metallurg. LXVIII N° 11, 1971

(4) - S.N. SINGH et M.C. FLEMINGS - Trans. AIME, Vol. 236, Mai 1966, 622-633

(5) - R.H. TIEN et V. KOUMP - Trans. A.I.M.E. - Vol. 242 Fév. 1968, 283-290

(6) - T.F. BOWER, H.D. BRODY et M.C. FLEMINGS - Trans. A.I.M.E. Vol. 236 Mai 1966, 624-633

(7) - B. CHALMERS - Principles of Solidification - Wiley

(8) - G.R. KOTLER et G.S. COLE - 3e conference internationale de croissance cristalline, Marseille 1971

(9) - G.P. IVANTSOV - Dokl Akad Nauk SSR 1947, 58, 567

(10) - D.E. TEMKIN - Dokl Akad Nauk SSR 1960, 1307-1310

(11) - G.F. BOLLING, W.A. TILLER - Journal of Applied Physics 1961, 2587-2605

(12) - G.R. KOTLER, W.A. TILLER - Journal of crystal Growth 1968, 287-307

(13) - J.A. HOWARTH, L.F. MONDOLFO - Acta Metallurgica Vol. 10, Nov. 1962, 1037-1042

(14) - R.E. SPEAR, G.R. GARDNER - Trans AFS 1963, 71, 209-215

(15) - M. IBARAKI, T. OKAMOTO, K. KISHITAKE, H. MATSUMOTO - Mem. Inst. Sci. et Ind. Res. - Osaka Univ., 25, 1968

(16) - P.K. ROHATGI, C.M. ADAMS - Trans. A.I.M.E., Vol. 239 Nov. 1967 1737-1743

(17) - H. MATYJA, B.C. GIESSEN, N.J. GRANT - Journal of the Institute of Metals - 1968, Vol. 96

(18) - L. BACKERUD, B. CHALMERS - Trans. A.I.M.E., Vol. 245 Fev. 1969, 309-318

(19) - GOUTEL, REYNAUD, MORICEAU (à paraître)

(20) - B.H. ALEXANDER, F.N. RHINES - Trans. A.I.M.E. Vol. 188, Oct. 1950 Journal of Metals 1267-73

(21) - H.D. BRODY, M.C. FLEMINGS - Trans. A.I.M.E. Mai 1966, 615-624

(22) - T.Z. KATTAMIS, U. THOLMBERG, M.C. FLEMINGS - Journal of Inst. of Metal. 1967, Vol. 95

(23) - A.A. CHERNOV - Kristallografiya 1 N° 5, 583 1956

(24) - J.J. REEVES et T.Z. KATTAMIS - Scripta Metallurgica. Vol. 5, 1971, 223-230

(25) - T.Z. KATTAMIS, J.C. GOUGHLIN, M.D. FLEMINGS - Trans. A.I.M.E. Vol. 239, Oct. 1967, 1504-1511

(26) - N.J. WHISLER, T.Z. KATTAMIS - Journal of Crystal Growth 15 (1972) 20-24

(27) - M. IBARAKI, T. OKAMOTO, K. KISHITAKE - Inst. of Scientific and Ind. Res., Osaka Univ., 1966, 1068-1074

(28) - R.M. SHARP et A. HELLAWELL - Journal of Crystal Growth 6 (1970) 253-260

(29) - KUOANG HO CHIEN et T.Z. KATTAMIS - Z. Metallkde. Bd 61 (1970) H. 6

(30) - V.G. SMITH, W.A. TILLER, J.W. RUTTER - Can. J. Phys., 33, 723 (1955)

(31) - R.M. JORDAN et J.D. HUNT - Metallurgical Transact. Vol. 2 Déc. 1971 3401

(32) - G. PFLIEGER - Thèse, Grenoble 1970.

(33) - H.S. CARSLAW et J.C. JAEGER - Conduction of Heat in Solids - Oxford at the Clarendon Press, 1959, page 200.

Vu,
Grenoble, le

Le Président du Jury
P. BRISSONNEAU

Vu et permis d'imprimer,
Grenoble, le

Le Président de l'Université
scientifique et médicale
M. SOUTIF